

報告番号 甲第 3227 号

液晶における非線形非平衡パターンの  
ダイナミクスに関する研究

日高芳樹

①

# 液晶における非線形非平衡パターンの ダイナミクスに関する研究

日高芳樹

# 目次

## 第1章 序論

§ 1.1 非線形非平衡系 .....	1
§ 1.2 液晶における電気流体力学的対流 .....	7
§ 1.3 本研究の目的 .....	12

## 第2章 大アスペクト比系における1次元周期パターンの形成過程

§ 2.1 はじめに .....	15
§ 2.2 実験 .....	17
2.2.1 ネマティック液晶 .....	17
2.2.2 セル .....	18
2.2.3 実験系 .....	20
2.2.4 測定 .....	20
2.2.5 画像解析 .....	21
§ 2.3 結果と考察 .....	22
2.3.1 1次元系における形成過程 .....	22
2.3.2 2次元系における形成過程 .....	32
§ 2.4 まとめ .....	50

## 第3章 自由境界を持つ対流系におけるパターン形成

§ 3.1 はじめに .....	52
§ 3.2 実験 .....	53
3.2.1 Free Lateral Boundary Cell .....	53

3.2.2	結合対流系	57
3.2.3	測定	60
§ 3.3	結果と考察	60
3.3.1	小アスペクト比の対流系	60
3.3.2	$x$ 方向に結合した対流系	67
3.3.3	$y$ 方向に結合した対流系	77
§ 3.4	まとめ	81

#### 第4章 振動する対流パターンにおける少数自由度カオス

§ 4.1	はじめに	84
4.1.1	カオスと対流現象	84
4.1.2	Williams domain の angle-deflective oscillation	87
4.1.3	本章の目的	91
§ 4.2	実験	92
§ 4.3	結果と考察	95
4.3.1	angle-deflective oscillation と準周期崩壊過程	95
4.3.2	相軌道の相関次元	104
4.3.3	Lyapunov 指数	114
4.3.4	つなぎ換え振動と間欠性カオス	120
§ 4.4	まとめ	126

#### 第5章 対流ロール間のリミットサイクル振動の相関

§ 5.1	はじめに	129
§ 5.2	実験	131

§ 5.3 結果と考察 .....132

§ 5.4 まとめ .....137

第6章 まとめ

§ 6.1 本研究のまとめ .....139

§ 6.2 今後の展望 .....143

謝辞 .....146

補記 .....147

参考文献 .....149

## 第1章 序論

### § 1.1 非線形非平衡系

初期に非平衡状態にある系を孤立させてそのまま放置すると、系はやがて平衡状態へ緩和していく。ところが、外界からエネルギーを取り込み続けるなどして非平衡状態が保たれると、平衡状態とは全く異なったふるまいを示す。加えられたエネルギーを別な形に変換して放出することによって系内にエネルギーのマクロな流れが生じ、さらにその流れにともなって驚くほど多様で興味深い現象が現れる。「非平衡開放系」とよばれるそのような性質をもつ系に対する関心は、近年非常に高まりつつある。

非平衡開放系の現象の代表例のひとつに、「レイリー・ベナール (R B) 不安定性」の問題がある。これは、2枚の平行平板間に入れた流体を下から熱することによって重力のはたらく方向に一定の温度勾配を与え、それによって非平衡状態を保持したときの流体のふるまいを調べるものである。下の平板付近で熱せられた流体は熱膨張によって相対的に軽くなるため、系は不安定な状態にあり、軽い流体は上方へ、重い流体は下方へ移動することによってその不安定状態を解消することができる。しかし温度差が小さいときは、流体の運動は粘性抵抗によって阻止され、熱拡散のみによって不安定状態が緩和される。温度差がある臨界値を越えると、熱拡散だけでは不安定状態を緩和することができなくなり、流体は粘性抵抗に打ち勝って運動を始める。そうして、熱せられた流体は上昇し、上方で冷やされて下降し、持続的な循環運動すなわち「対流現象」が発生する。以下では、本研究の研究対象でもある対流現象に即して非平衡開放系の特質について概観する。

対流現象に限らず、流体運動一般を記述する方程式は、Navier-Stokes 方程式

$$\rho \frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} = -\nabla p + \rho \mathbf{g} + \nu \rho \nabla^2 \mathbf{v} \quad (1.1)$$

である。ただし、密度  $\rho$ 、温度  $T$  の流体が速度  $\mathbf{v}$  で運動しているとし、 $p$  は圧力、 $\mathbf{g}$

は重力加速度,  $\nu$  は粘性係数である. また熱の輸送に関しては, 比熱が温度によらず一定であるとし,  $\kappa$  を熱伝導係数とすると,

$$\frac{\partial T}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla)T = \kappa \nabla^2 T \quad (1.2)$$

によって表わされる. (1.1) 中の  $(\mathbf{v} \cdot \nabla)\mathbf{v}$  と (1.2) 中の  $(\mathbf{v} \cdot \nabla)T$  は, 流体が流れることによって非線形性が生じることを示す慣性項である. 例え非平衡開放系であっても, (1.2) 式の慣性項を落とした熱拡散のような線形過程によってエネルギーの収支バランスを取っている間は非平衡開放系特有の興味深い現象は生じない. 非平衡の度を強くして系内に流れが生じると, その流れ自体が非線形性を生じ, 多様な「不安定性現象」を引き起こす.

そのような非平衡系に現れた非線形現象 (以下「非線形非平衡現象」とよぶ) は, 空間的秩序構造として現れる場合がある. RB不安定性において静止状態が不安定化して対流が生じると, ロール状に規則的に並んだ流れのパターンが系内に形成されるが, これが空間的秩序構造として現れた非線形非平衡現象の一例である. 熱平衡系においても, 結晶における原子の配列などに空間的秩序構造の自発的形成が見られる. ところが, 結晶は構成要素である原子やイオン, 分子などの性質によって決まるミクロな周期性をもつものに対し, 対流構造の場合は, 物質のミクロな性質よりも (1.1, 2) で表わされるような流体としてのマクロな性質や系全体の幾何学的形状や境界条件によって決まるマクロな周期性をもつ. そのように, 非平衡開放系において形成される秩序構造はその形成機構やふるまいが熱平衡系の場合とは大きく異なっており, I. Prigogine らは熱平衡系における秩序構造を「平衡構造 (equilibrium structure)」, 非平衡開放系における秩序構造を「散逸構造 (dissipative structure)」とよんで区別した<sup>1)</sup>. 対流系に生じたロール状パターンは, 散逸構造の代表例としてさまざまな観点から研究が進められている.

対流系において, 外部から変化させることのできる上下平板間の温度差は, 系のふるまいを決める最も重要なパラメータであり, 「外部パラメータ」あるいは「制御パラメータ」とよばれている<sup>2)</sup>. 外部パラメータをさらに大きくしていくと系の非線形性・非平衡性が強くなり, ロール状パターンは不安定化し, 非常に特徴的な遷移過程を経て最終的に空間的にも時間的にも非周期的に変動する「乱流状態」へ至る. その過程

<sup>1)</sup> 通常は, 温度差を無次元化した「Rayleigh 数」が外部パラメータとして用いられる.

は、「乱流への遷移過程」としてこれまで数多くの研究が行われている。静止状態が不安定化してロール状対流が生じる不安定性を“primary instability”とすれば、ロール状対流パターンの不安定化は“secondary instability”とよぶことができる。secondary instabilityには空間構造に着目する観点と時間構造に着目する観点があり、どちらの観点についても、外部パラメータを大きくしていったときに、ある状態が不安定化して別の状態が突然現れる「分岐」とよばれる概念が重要となる。まず前者については、一方向のみに周期をもつ1次元周期パターンであるロール状パターンが不安定化して、ロール軸方向に周期的な歪みが生じ、2次元周期パターンが現れる。1次元あるいは2次元の周期パターンの安定性を論じる「線形安定性理論」によって、空間パターンの分岐が調べられている<sup>2)</sup>。時間に関する secondary instabilityは、定常な流れのパターンが不安定化して対流構造自体の大局的な振動が生じる現象である。最初に現れる振動は、「リミットサイクル振動<sup>12)</sup>」とよばれる非線形周期振動であり、これは時間的秩序構造として現れた非線形非平衡現象の一例である。また結晶では、原子などがその平均位置の周りで熱的にゆらぐだけで大局的な運動は生じないので、この点も平衡構造と散逸構造の違いである。

対流現象や乱流への遷移過程を理論的に扱おうとする場合、まず第一に(1.1, 2)のような基礎方程式を用いることが考えられる。ところがこれらの方程式は解析的に解けない場合の多い非線形偏微分方程式であり、またその非線形項が実際に現れる非線形現象とどのような関係にあるか完全には理解されていない。また、仮に数値的に解を求め対流現象を再現したとしても、方程式には対流現象に限らないすべての流体運動に関する情報が含まれているため、対流現象に特有の時間空間的構造の機構を明らかにしたとは言い難い。そのため、個々の現象の機構を数理的に明らかにするためには、時間空間的に変動する複雑なふるまいの中から個々の現象を特徴づける情報のみを抽出する「情報の縮約」を行わねばならない。

上述したように、対流構造は空間的周期構造として現れる場合が多い。周期構造には位相と振幅という定数が含まれるが、primary instabilityの過渡過程や乱流へ至る初期段階では、基本的に周期構造を保ちつつわずかに乱れた構造が現れるので、位相と振幅を時間空間的に変動する量と見なすことによって、そのダイナミクスを記述することができる。流速や温度といった流体変数の中から位相や振幅のみを抽出して議

<sup>12)</sup> 初期条件に依存しない固有の振幅をもち、外的攪乱に対しても安定である周期振動。



論するこのような理論的アプローチは、情報の縮約の一例であり、それぞれ「振幅ダイナミクス」、「位相ダイナミクス」とよばれ、系のおかれた条件や対象とする現象に応じてさまざまなモデルが提出されている<sup>3,4)</sup>。

振幅ダイナミクスでは、「振幅方程式」とよばれる非線形発展方程式が導かれ議論されている。定常なロール状対流に対して、鉛直方向（温度差をつける方向）を  $z$  とし、ロールは  $x$  方向に並びロール軸は  $y$  方向を向くとする<sup>1a)</sup>。波数  $k_c$  のモードが不安定化するとき流速の  $z$  成分  $w$  は、

$$w(x,y,z,t) = (Z + Z^*) \sin \frac{\pi z}{d}, \quad Z(x,y,t) = W(x,y,t) e^{ik_c x} \quad (1.3)$$

のように書ける。ただし、対流系の厚さを  $d$  とし、 $Z^*$  は  $Z$  の複素共役を表わすとする。Newell と Whitehead は、複素振幅  $W$  に対して振幅方程式、

$$\frac{\partial W}{\partial t} = \mu W - |W|^2 W + \left( \frac{\partial}{\partial x} - \frac{i}{2k_c} \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right)^2 W \quad (1.4)$$

を導いた<sup>5)</sup>。ただし  $\mu$  は分岐パラメータである。これは、(1.1, 2) のような基礎方程式からロール状対流に即して導かれた最も初期の振幅方程式で、一般に「Newell-Whitehead (NW) 方程式」とよばれている。

上述した乱流への遷移過程の時間的な側面は、近年は「カオス」とよばれる概念と結び付いて非常に活発に研究が行われている<sup>2)</sup>。今のところ「カオス」という言葉の厳密な定義に関する統一的な見解はないが、一般的には「決定論的な系の作り出す非周期的時間振動」と定義されている。とくに、系の自由度が数個の場合を「少数自由度カオス」とよんで区別する場合もあるが、本研究では少数自由度カオスの意味で「カオス」という言葉を用いることとする。一般にカオスでは、分岐パラメータを大きくしていくと、静止状態が分岐してリミットサイクル振動が生じ、さらにいくつかの分岐を経て非周期振動が生じるが、対流系の1点における流速、温度などの時間変動を外部パラメータを上げながら測定することによって、同様の分岐現象が観測されている。また、対流系で実際に観測された非周期振動が少数自由度のメカニズムで生成されているか否かを検証する試みも数多くなされており、カオスを乱流のモデルとするという観点と、対流系をカオスの実験的検証に用いるという観点の双方から研究が行われている。対流系は空間自由度をもつ系なので、その状態を表わすためには無限次

<sup>1a)</sup> この  $x, y, z$  軸の取り方はロール状対流を扱う場合には一般的なもので、以下でも同様の取り方をとする。

元の相空間が必要となる。そのような、本来無限個の自由度をもつはずの系の分岐や非周期振動が少数自由度のメカニズムで表現できることも、情報の縮約の一例である。

また対流現象とカオスの結び付きの別の例としては、次のような3変数の非線形常微分方程式で表わされる「Lorenz モデル<sup>6)</sup>」が知られている。

$$\begin{aligned}\frac{dX}{dt} &= -\gamma X + \gamma Y \\ \frac{dY}{dt} &= \mu X - Y - XZ \\ \frac{dZ}{dt} &= -bZ + XY.\end{aligned}\tag{1.5}$$

このモデルは、(1.1, 2) 式から非線形性を考慮して、流速と温度分布のフーリエ分解において3つのモードだけをとったもので、 $X$  は流速の空間変化の基本波モードの振幅、 $Y$  は温度変化の基本波モードの振幅、 $Z$  は温度変化の第2高調波モードの振幅を表わす。また、 $\mu$  は温度差に関する外部パラメータ、 $\gamma$  は動粘性係数の熱拡散係数に対する比である Prandtl 数、また  $b$  は、空間変化の基本波数  $k_c$ 、対流系の厚さ  $d$  に対して、 $b = 4/(1 + k_c^2 d^2)$  で表わされるパラメータである。流体運動の基礎方程式から、対流運動と非線形性に関するモードのみを抽出したこのモデルも情報の縮約の一例であり、無限自由度系が少数自由度系に縮約されたにも関わらず非周期的振動が現れるため、カオス研究のきっかけのひとつとなった。

実際に対流系一般で観測される secondary instability は、空間構造が時間振動するような空間構造と時間構造が複雑に絡み合った現象である。したがって、乱流への遷移過程における空間的側面と時間的側面を個別にあらわにするためには、系にある制限を加える必要があるが、その際重要になるパラメータが、系の水平方向の長さ  $L$  の厚さ  $d$  に対する比である「アスペクト比  $\Gamma (= L/d)$ 」である。普通隣り合うロール間の間隔は  $d$  と同程度なので、小アスペクト比 ( $\Gamma \sim 1$ ) の系では、境界条件を満たし  $L$  と同程度の波長をもつ少数の空間モードのみが励起されうる。secondary instability が生じても他のモードが励起されることはできないため、空間パターンの大規模な遷移を引き起こすことなく、時間的振動不安定性が生じる。また励起される空間モードが少数であることから、時間振動も空間的にコヒーレントな状態を保つと考えられる。したがって系の1点で得られた情報が系全体の情報を代表していると考えられる。

えられ、カオスの研究は小アスペクト比の系で行われている。一方大アスペクト比 ( $\Gamma \gg 1$ ) の場合は、空間自由度が大きくなるのでさまざまなパターンの観察が可能になり、したがって、空間パターンの分岐を観測するのに適した系となる。また、側壁付近を除けば側壁の影響を無視できると考えられるので、境界条件を考慮する必要がなかったり、周期境界条件を採用すればよいなど、空間パターンの数理的取り扱いにおいても有利となる。

アスペクト比は primary instability の観測に関しても重要なパラメータである。大アスペクト比系では、secondary instability と同様に側壁の影響を無視することができるし、逆に、側壁の影響を調べたいときはある程度アスペクト比の小さい系で観測を行えばよい。

カオスは小アスペクト比系における乱流への遷移過程との対応がつくと考えられるが、このような限られた条件下での乱流への遷移過程の研究を、より一般的な系に拡張する試みも行われている。例えば、カオスを示す1次元写像を拡散的に結合することによって空間の自由度をもたせた「Coupled Map Lattice」の研究<sup>7)</sup>や、位相ダイナミクスによって導出された「Kuramoto-Sivashinsky 方程式」による位相乱流の研究<sup>8,9)</sup>などが行われている。

秋の空に見えるいわし雲など、対流現象はわれわれの身近で観察することのできる日常的な現象である。それが科学の対象となったのは、流体を直方体や円柱といった単純な形状の容器に封入し、外部パラメータを高い精度で制御するなどして、系を非平衡開放系の条件以外をできるだけ単純化し整えられた条件下において実験的研究が行われるようになってからである。それによって、どのような条件下でどのような秩序が現れるか、どのような遷移過程を経て乱流状態へ至るかを観察することができるようになった。

結晶や磁性体のような平衡構造はミクロな構造だが、単結晶の表面や磁気を帯びた物質など、初めはマクロな存在として意識されたであろう。しかし今では、そのマクロな性質とミクロな構造を結ぶ物理や、ミクロな構造をマクロな世界のわれわれが間接的に知る手段などの基礎的な部分は確立されていると考えられる。逆に散逸構造はそれ自体がマクロなため、比較的簡単にそのふるまいを一望することができる。しかしながら、空間的秩序や時間的秩序などの生じる機構はいまだ理解されていない部分が多く、系のおかれた条件をわずかに変えると現れる現象が大きく変わるなど、その

ふるまいに関しても未知の部分が多い。したがって実験的研究においても、目前に繰り広げられる多様な現象を単にながめるだけでなく、その中からどのような情報を抜き出して議論するか、すなわち「情報の縮約」が非常に重要となる。

非線形非平衡現象は、流体系だけでなく化学反応系やレーザー、電気回路の発振現象など多岐にわたって見られる。個々の現象を比べると一見全く異なったものに見えるが、秩序構造の現れる数理的機構が共通などの普遍性が存在する。これまで述べてきた散逸構造、振幅・位相のダイナミクス、カオスなどの概念は、そういった普遍性を表わすものである。(1.1, 2)は、あらゆる流体運動を含んでいるという意味で普遍的である。それに対し(1.4)のような振幅方程式は、対流の *primary instability* という特殊な状況から出発して導出されたが、振幅という流体の実体から離れた量を抜き出して議論したために、2次元的非平衡開放系に1次元周期パターンが形成されるさまざまな物理的状況に適用できる普遍的な方程式となった。

## § 1.2 液晶における電気流体力学的対流

ある種の有機化合物を結晶状態から昇温していくと、ある温度で、著しく白濁しているが十分な流動性をもった“液体”になり、さらに昇温していくとまたある温度で、通常の透明な液体になる。この白濁した“液体”を偏光顕微鏡で観察すると、結晶のもつ性質である「光学的異方性」をこの“液体”がもっていることがわかる。このように、液体のもつ性質である流動性と結晶(固体)のもつ性質である光学的異方性の両方をもつ状態を「液晶相」といい、相系列の中に液晶相を含む物質を「液晶」という。液晶状態を示すのは、多くの場合、棒状分子からなる有機物質である。このような物質は、結晶が融けて分子の重心の位置に関しては長距離的な秩序が失われるが、分子の配向に関する長距離的な秩序は保たれることによって、液晶状態になる。通常物質では、これら2種類の長距離的な秩序は融点で同時に失われ、固体から直接液体になる。

液晶相は対称性の点でさらにいくつかに分類されるが、分子の長軸が一方向に揃っているだけの最も対称性の高いものをネマティック相とよぶ。ネマティック液晶における棒状分子の長軸の配向方向およびそれに垂直な方向の誘電率をそれぞれ

$\epsilon_{//}$ ,  $\epsilon_{\perp}$ , 導電率をそれぞれ  $\sigma_{//}$ ,  $\sigma_{\perp}$  とし, これらの量の異方性を  $\Delta\epsilon = \epsilon_{//} - \epsilon_{\perp}$ ,  $\Delta\sigma = \sigma_{//} - \sigma_{\perp}$  とする.  $\Delta\epsilon < 0$  (負の誘電異方性),  $\Delta\sigma > 0$  (正の導電異方性) という性質をもつネマティック液晶<sup>10)</sup>を2枚の透明な平行平板電極(通常はガラス板に透明電極を塗布する)の間にはさむ. ただし配向ベクトル<sup>11)</sup>が電極に平行に一定方向を向く平行配向をさせる. そしてあるしきい値以上の電場を印加すると, 「Williams domain<sup>10)</sup>」とよばれる縞状のパターンが顕微鏡下で観察される. これは§ 1.1で述べたRB不安定性と類似の現象で, 電場による液晶の対流と液晶の光学的異方性によって観察される対流パターンである. この不安定性は電場によって引き起こされるので, 「電気流体力学的不安定性 (Electro-Hydrodynamic Instability, EHD)」とよび, 生じた対流を「電気流体力学対流 (Electro-Hydrodynamic Convection, EHC)」とよぶ.

Williams domain が発生する機構は「Carr-Helfrich の不安定性」によって説明されるが<sup>11-13)</sup>, 定性的には次のようになる(図1-1). まず透明電極を塗布したガラス面に平行に液晶を配向させる(a). その方向を  $x$  方向とすれば, 配向ベクトルは  $x$  軸に平行な単位ベクトルとなるが, 実際は液晶分子は常時熱揺動をしている. いま, 図(b)に示すような周期的な配向ベクトルの変形(歪み角  $\theta$  で表される)が生じた瞬間を考えると, 正の導電異方性により  $x$  方向に電流 ( $J_x$ ) が流れ, 図に示す位置に正 (+) と負 (-) の空間電荷分布が形成される. このモードのゆらぎの緩和時間が空間電荷分布の形成に必要な時間よりも長いものとする. この電荷分布によって  $x$  方向の電場 ( $E_x$ ) が生じる. 液晶は負の誘電異方性をもつため, その配向ベクトルは合成電場 ( $E$ ) に対して垂直になろうとする. 同時に蓄積された電荷がそれぞれ逆符号の電極へ移動を開始し, まわりの液晶分子はその電荷の移動に引きずられて対流を生じる. これら合成電場に対して垂直になろうとする力と対流による液晶分子間のずり応力は,  $\theta$  をさらに大きくするようにはたらく. 配向ベクトルのゆらぎは緩和しない. この結果, 電荷の蓄積はますます進み,  $E_x$  がさらに増加し, ゆらぎは成長する. 不安定性はこのような正のフィード・バックによって生じるが, 液晶の弾性力がこのゆらぎによる歪みをもとにもどそうとする阻害因子としてはたらくため,  $\theta$  は  $x$  方向のみに周期性をもった定常状態に落ち着く.

<sup>10)</sup> 本研究ではネマティック液晶のみを用いたので, 以下では特にことわらない限り, 単に「液晶」と書かれてある場合は, ネマティック液晶を指すものとする.

<sup>11)</sup> 棒状分子の長軸の配向方向を表わす単位ベクトル.

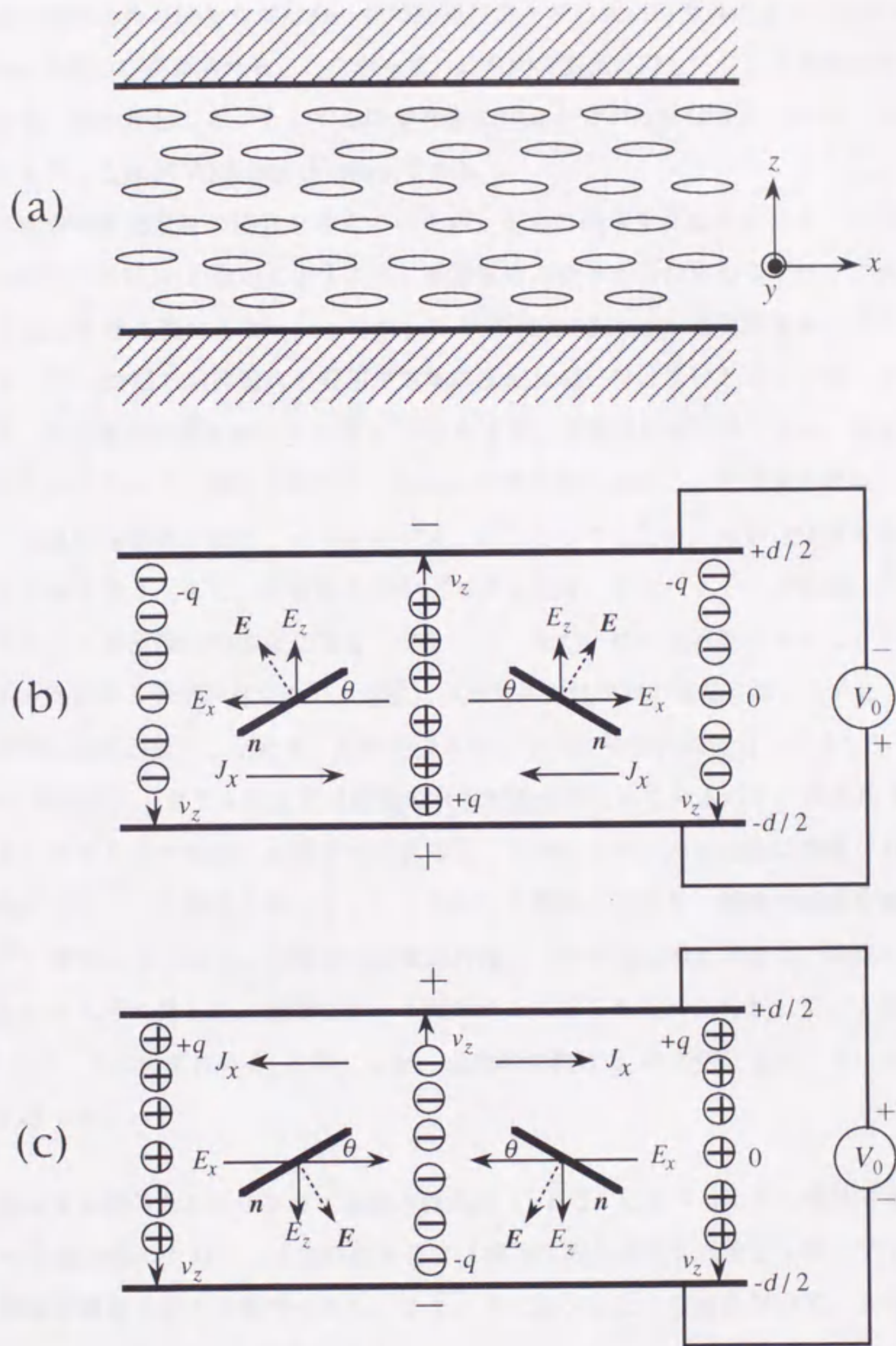


図1-1 電氣流体力学的不安定性の発生機構.

液晶は光学的異方性をもつため、この配向ベクトルの周期的歪みによって屈折率も  $x$  方向に周期的に変調される。したがって、 $x$  方向の偏光に対してレンズ効果が作用し、光の集光・発散が起こる。そしてこの集光面に焦点を合わせれば縞状のパターンが観察される<sup>15)</sup>。これが Williams domain である。

この機構は直流電場の場合を考えているが、電場の向きを反転させても、空間電荷の緩和が充分早ければ図(c)に示すように蓄積電荷の符号が入れ替わるだけで、流れの方向も歪み角  $\theta$  も変化しない。したがって Williams domain は交流電場下でも形成される<sup>16-18)</sup>。ただし空間電荷の緩和が電場の反転に追い付けなければこの限りではないので、印加電場の周波数には上限  $f_c$  が存在する。実際は直流電場下では、電極からの電荷注入によって、別の不安定性 (Felici 不安定性) が起こって現象が複雑になったり、液晶の導電率が変化したり寿命が短くなったりするため、通常は交流電場を印加して実験を行う。また、誘電異方性が正の液晶では、配向ベクトルが電極に対して垂直を向いた垂直配向の場合に EHC が生じる。ただ一般に垂直配向セルより平行配向セルを作製する方が容易なので、実験には誘電異方性が負の液晶が用いられる。

セル内に対流が発生したとき、配向の歪みが  $x$  方向に周期的に波打つだけでなく、 $z$  方向に境界条件 (ガラス面上では初期の水平配向が保たれているので、歪み角  $\theta = 0$  である) があるので配向に  $z$  依存性がある。したがってセル内の光路は複雑になり、顕微鏡のステージの高さを変えることによって2種類の実像と1種類の虚像が観察される<sup>15)</sup>。簡単に述べると、2種類の実像は対流ロールの接点の上昇流と下降流の部分の直上にそれぞれ見られ、虚像はロール軸の直上に見られる。したがって、実像の波数は (1.3) 式に含まれる  $k_c$  と等しいが、虚像の波数は  $k_c$  の2倍になることに注意しなければならない。

液晶は異方性のある流体なので基礎方程式は (1.1, 2) に比べはるかに複雑であるが<sup>19)</sup>、その異方性のために、液晶の EHC では等方性流体の RB 対流と比較してより多彩な現象が観察される可能性がある。また、次に述べるような点において、RB 対流よりも実験的な取り扱いが容易である。

- (1) 等方性流体の RB 対流では流れを可視化するための技術が必要となるが、液晶は光学的異方性をもつので、光学顕微鏡を用いて容易にパターン全体を観察することができる。

- (2) 外部パラメータが電場なので、RB対流の温度差に比べ制御が容易である。
- (3) 全般的に、RB対流に比べ応答の時間スケールが短い。

§ 1.1で述べたように、アスペクト比の大きい対流系は空間パターンの多様性を観察するのに適している。しかし等方性流体のRB対流系では、アスペクト比を大きくし過ぎると、ロール軸が系全体で一定方向を向かず、多晶質的なパターンが形成されてしまう。また、対流系内のあるゆらぎが落ち着くまでに要する時間は $\Gamma^2$ に比例して増大するので<sup>20)</sup>、観測には膨大な時間を要することになる。液晶のEHCでは、上述のCarr-Helfrichの不安定性によれば、ロールは液晶分子の配向方向に並ぶので、分子配向を制御できればロール軸の向きも制御できることになる。液晶を、その異方性を生かした物理系として観測に用いようとする場合、液晶をはさむガラスに表面処理を施すことによって分子の配向方向を数 $\text{cm}^2$ の範囲にわたって揃えることができる。通常液晶を封入するセル<sup>26)</sup>の厚さは数 $10\mu\text{m}$ 程度<sup>27)</sup>と大変薄いので、ロール軸の向きが揃ったアスペクト比の大きな系を作ることができることになる。加えて上の(3)の性質があることから、効率的に大アスペクト比系の実験的研究を行うことができる。

Carr-Helfrichの不安定性は、液晶分子の配向ベクトルの周期的な変形を仮定し、フィード・バック作用によって対流が発生・成長する様子を説明している。しかし実際は、配向ベクトルの熱的ゆらぎはさまざまなモードの重ね合わせで表わされ、その中から、対流と相互作用しながら特定のモードのみが成長することになるが、Carr-Helfrichの不安定性は、そのことに対する説明は与えない。したがってこの問題は、振幅ダイナミクスを用いて考察しなければならない。

EHCに関する基礎方程式系は、異方性流体に対するNavier-Stokes方程式に加え、Maxwell方程式に基づく電荷保存則、液晶の粘性理論と弾性理論に基づく角運動量保存則を考慮せねばならず、非常に複雑になる。しかしながら振幅ダイナミクスでは、配向処理による初期の対称性のやぶれによって、逆にRB対流におけるNW方程式よりも単純な形をした、「Ginzburg-Pitaevskii (GP) 方程式」とよばれる次のような振幅方程式が現象論的に導かれる<sup>21)</sup>。

<sup>26)</sup> EHCを観測するために、透明電極が塗布され表面処理が施されたガラスの間に液晶をはさんだものを、“セル (cell)” とよぶ。

<sup>27)</sup> 電場によって対流が起こり、表面処理によってセル内の液晶がすべて配向し、光学顕微鏡下で対流パターンを観測できるためには、この程度の厚さが適当である。



$$\frac{\partial W}{\partial t} = W - |W|^2 W + \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} \right) W. \quad (1.6)$$

液晶のEHCは、その複雑さによって多彩な現象の観察が期待できるという面もあるが、逆に Carr-Helfrich の不安定性のような対流の発生機構の物質的な側面を無視し、異方性のある系に対流によって秩序構造が形成されるという面にだけ着目すれば、このようにより単純な系であると思倣することもできる。したがって、上述の実験上の有利な点を生かして、非線形非平衡現象の普遍的な性質に関する知見を得ることが期待できる。

### § 1.3 本研究の目的

本研究では、液晶のEHCにおけるパターンを観測することによって、非線形非平衡系に形成されるパターン（以下「非線形非平衡パターン」とよぶ）に関する実験的知見を得ることを目的とする。特に、primary instability におけるパターンの時間発展と、secondary instability におけるパターンの時間振動といった、非線形非平衡パターンの「ダイナミクス」の観測を行った。

1963年に Williams domain が発見されて以来、液晶のEHCは活発に研究が行われてきた。当初は、§ 1.2で述べた Carr-Helfrich の不安定性のような対流の発生機構を明らかにするための研究が行われたが、それがある程度明らかになると、§ 1.2で述べたEHCの実験上の有利な点を生かした理想的な対流系として、さらに活発に研究が行われるようになった。しかしながら、これまではアスペクト比の大きな大自由度系における多彩なパターン・現象の観測が行われてきており<sup>22,23)</sup>、時間構造よりも空間構造に重きをおいた研究が行われてきた。それに対し本研究では、小アスペクト比系や、あるいは大アスペクト比系でも発達した不安定性ではなく初期の不安定性に注目し、特に、時間発展・時間変化に重きをおいた研究を行った。複雑で多彩な現象が観測できるのはEHCの長所ではあるが、一方、比較的簡単な現象を精密に観測する場合にも、実験上の有利な点を生かして効率的に多くの情報を得ることができる。本研究でも、空間構造全体をリアルタイムで観察できるという特長をフルに生かして、非線形非平衡パターンのダイナミクスの研究を行った。

本研究で調べた内容は、非線形非平衡パターンの形成過程の観測と非線形非平衡パターンの時間振動の観測に大きく分けられる。

前者に関しては、まず第2章で大アスペクト比系における1次元周期パターンの形成過程を調べた結果を示す。1次元周期パターンの形成は対流系の最も基本的な不安定性であるが、その過渡過程を定量的に調べた。大アスペクト比系は境界から影響を受けない一様系とみなすことができ、周期パターンが形成される過程のみを純粹に観測することができる。一様な系に周期パターンが形成される過程を定量的に調べるために、波数空間における周期性の発達を観測した。

第3章では逆に、境界条件の影響を強く受ける小アスペクト比系における非線形非平衡パターンの形成について述べる。系の大きさ、境界条件がパターンの形成過程に与える影響について調べた。またEHCでのみ実現できる特殊な境界条件を生かした「結合対流系」を開発し、そこでのパターン形成について調べた。

後者に関しては、空間的な自由度を抑えた小アスペクト比系で、1次元周期構造を大局的に保ったまま時間振動を起こす場合について調べた。空間構造を大局的に保っていることから、その時間変化を1個のロールに代表させることができる。まず第4章では、そのように1個のロールの運動に着目し「少数自由度カオス」を観測した結果を述べる。

カオスは時間的不規則振動を表わすものだが、対流系は外部パラメータを十分に大きくすると、時間空間的に不規則に振動する乱流状態に至る。EHCでは非線形非平衡パターン全体の時間変化を観測できるので、そのような時間空間的な現象を調べることができる。第4章の実験ではカオスによって時間的な相関が失われていく過程を観測したので、次は空間的相関についても調べる必要がある。その第1段階として、第5章では2個のロール間の振動の相関を観測した結果を述べる。

流体現象を完全に記述しようとする場合、本来なら、(1.1, 2)のように3次元系のすべての点において流速や温度などの流体変数についての情報を与えなければならない。しかしながら対流現象を扱う場合は、十分に発達した乱流でもない限り、(1.3)のように流速の $z$ 成分を秩序パラメータに選べば、 $(x, y)$ 面内の各点において流速を $z$ 方向に平均するとか、 $z = \text{一定}$ の平面上での流速を知ることによって、2次元平面の情報に縮約することができる。しかし実際には、 $xy$ 面上のすべての点における流速を同時に測定することは困難なので、非線形非平衡パターンの時間変化を観測する

ことも難しい。それに対し本研究では、顕微鏡像の明るさの時間空間的变化を画像解析等の手法を用いて観測した。パターンの明るさは流体変数ではないが、対流を反映した量であり<sup>15)</sup>、時間空間的变化を直接観察することができる。振幅や位相のダイナミクスを考えたように、対流の空間構造とその時間変化を的確に捉えることのできる量の観測を行えば、非線形非平衡現象の普遍的な性質を調べることができると考えられる。§ 1.2で述べたように、EHCでは、液晶の光学的異方性によって光学顕微鏡下で非常にコントラストの良い対流パターンを観察することができる。最近ではその特長を生かして、画像解析の手法によってEHCのパターンの観測が行われている。これまでの画像解析は、基本的に静的なパターンに対して用いられてきた手法である。一方本研究で用いた画像解析装置は、大きな画像メモリーと、連続的なビデオ画像から一定時間間隔で画像をメモリーに取り込む機能をもっており、時間変化する現象を観測することができる。本研究ではそのような「動的画像解析」の手法を用いて、非線形非平衡パターンのダイナミクスを観測した。

## 第2章 大アスペクト比系における 1次元周期パターンの形成過程

### § 2.1 はじめに

§ 1.1で述べたように、非平衡開放系に形成される散逸構造はしばしば周期的パターンとして現れる。例えばR B対流や液晶のEHCでは、外部パラメータがあるしきい値を越えると、流れのない静止状態が不安定化し、1次元的な周期をもった<sup>1)</sup>マクロな流れ構造が現れる<sup>1-6)</sup>。そのような1次元周期パターンの形成に関して最も興味ある問題のひとつは、そのダイナミクス、すなわち一様なあるいは非周期的な初期状態から最終的な周期パターンへ至る時間発展過程である。

対流系における不安定性現象は、一般に、印加電圧のような外部パラメータだけでなく、系の自由度の大きさに相当するアスペクト比に強く依存する。アスペクト比の小さい系におけるパターン形成過程は第3章で詳しく述べるが、横方向の境界条件を考慮する必要がある、またパターンの波数が不連続にしか変わり得ないなど、特殊な場合であると考えられる。それに対しアスペクト比の大きい系では、側面の境界から十分に離れた領域を観測すれば境界の影響を除くことができ、またパターンの波数もほぼ連続的に変化することができる。したがってパターン形成過程の数理的な性質をより一般的に明らかにする場合、大アスペクト比系における観測の方が適していると考えられる。

第1章で述べたように、3次元的な対流構造は2次元平面上のパターンに縮約することができる、EHCではさらにそれを濃淡パターンとして観測することができる。さらにEHCでは、ロール軸のそろった大アスペクト比系をつくることのできるため、primary instabilityの観測に適していると考えられる。

これまでに、そのようなEHCのprimary instabilityのダイナミクスに関して次のような研究が行われている。まず第一に、パターンの発展過程を何度も観測すると、

<sup>1)</sup> 波数ベクトルが、 $x$ 成分のみをもつ。

その中間領域で秩序変数のゆらぎが異常に大きくなる現象が観測されている<sup>1)</sup>。これは非平衡系の緩和現象についての理論的な研究<sup>7,8)</sup>とも関連があり、EHDの他の現象においても、配向ベクトルのパラメータ発振不安定性<sup>9)</sup>や Williams domain の振動不安定性<sup>1)</sup>で観測されている。

また、2次元系に1次元周期パターンが形成される過渡過程において、トポロジカルな欠陥の運動を観察した研究も行われている<sup>2-4)</sup>。流体は常時熱揺動をしているが、外部パラメータがしきい値以上になるとその熱揺動がトリガーとなって不安定性が生じ、特定のモードの構造のみが成長する。しかし周期構造の成長には空間的なばらつきがあり、初めは局所的に周期性をもったパターンが現れ、それから長い時間かけて完全な周期性をもつようになる。2次元系では、局所的に周期性をもった部分の間にトポロジカルな欠陥が生成され、それが動いて消滅することによって完全に周期的になる。

それに対し1次元系では、トポロジカルな欠陥は生成され得ず、対流ロールを配列し直すことだけで波数や位相を調節し周期的になろうとすると考えられる。primary instability は振幅方程式によって記述できるが、Schober らは次のような1次元振幅方程式を用いて、1次元系に1次元周期パターンが形成される過程を詳細に調べた<sup>5)</sup>。

$$\frac{\partial}{\partial t} y(x,t) = \left[ \gamma^2 - \left( 1 + \frac{\partial^2}{\partial x^2} \right)^2 \right] y(x,t) - y^3(x,t). \quad (2.1)$$

これは一般に Swift-Hohenberg 型とよばれている振幅方程式で<sup>10)</sup>、 $y$  は秩序パラメータ、 $\gamma$  は外部パラメータである。彼らは不規則に変動する小振幅の初期値を与え、周期パターンが成長していく様子を調べた。特に、フーリエ・スペクトルにおいてパターンの周期に相当するピークの積分強度とピーク幅の時間変化を調べた。また、形成過程の最終段階でパターンの位相拡散によって周期性が完全になっていくことを示した。

本研究では、アスペクト比の大きい1次元系における1次元周期パターンの形成過程を観測し、Schober らの得た振幅方程式の結果との比較を行った。また、2次元系の大アスペクト比系における1次元周期パターンの形成過程も観測し、1次元の場合と同様にフーリエ・スペクトルにおけるふるまいを調べ、1次元の場合と比較した。

## § 2.2 実験

## 2.2.1 ネマティック液晶

§ 1.2で述べたように、液晶のEHCは、一般に誘電異方性が負で導電異方性が正のネマティック液晶を平行配向させたセルで観測される。液晶はもともと絶縁体であるが、実際にはいくらかの導電率  $\sigma$  を示す。これは分解生成物や外部からのインジェクションなどによる不純物イオンによるもので、任意にはコントロールし難いものである。通常配向ベクトルの方向の導電率  $\sigma_{\parallel}$  はそれと垂直方向の  $\sigma_{\perp}$  より大きい。例えば液晶のEHCに一般的に用いられるネマティック液晶MBBA (p-methoxybenzilidene-p'-n-butylaniline) の場合は、 $\sigma_{\parallel}/\sigma_{\perp} = 1.5$ で正の導電異方性をもつため、§ 1.2で述べたCarr-Helfrichの不安定性でEHCが起こる。

本研究では、同じ測定を繰り返し何度も行ったり、パターンがゆっくりと運動する様子を観測するなど、かなり長時間にわたる測定を行う必要がある。もともと分解や電荷のインジェクションによって液晶が導電性を示すのであれば、長時間の電場印加によってそれらがますます進行し、測定中に試料が劣化する恐れがある。

液晶はパターン形成や物性など物理学的に非常に興味深い物質であるが、工学的な応用も活発に行われており、その代表例がディスプレイへの応用である<sup>11)</sup>。ネマティック液晶に強い電場を印加するとEHDによって乱流状態が生じ、それにとまってセルが光を散乱するようになる。これを「dynamic scattering mode, DSM」とよぶが、当初はこのDSMを利用した液晶ディスプレイが考えられた。しかし乱流を生ずるのに高電場が必要になるなど消費電力が大きいため、実用化には至らなかった。現在では配向が電場によってコントロールできることを利用したTNセル<sup>12)</sup>とよばれるセルが一般的に用いられている。本研究ではMBBAを使用せず、DSMを利用したディスプレイ用に合成されたネマティック液晶ZLI-1831 (Merck) をすべての実験で用いた。ZLI-1831は、EHCを生ずるのに必要な負の誘電異方性と正の導電異方性を示し、また長時間電場を印加しても劣下せず、本研究の測定にも充分耐えうる。また、液晶相の温度範囲(-20°C~88°C)が比較的広い<sup>13)</sup>、Williams domainが観測できる印加電場の周波数の上限 $f_c$ が高い、などの特徴もある。

<sup>11)</sup> MBBAでは、20°C~47°Cである。

## 2.2.2 セル

図2-1は、1次元系におけるパターン形成過程を観測するための細長いセルの概略図である。厳密に言えば1次元系を作成するのは不可能だが、十分に幅を狭くした（ $y$ 方向のアスペクト比  $\Gamma_y$  を小さくした）セル内では欠陥は生成されにくく、生成されてもすぐに消滅してしまい、平行なロールの再配列によってのみ周期的になるため、実質的に1次元系と見なし得る。上下のガラス板の大きさは  $1 \times 1 \text{ cm}^2$  で、その表面の一方には一面に indium tin oxide (ITO)<sup>13)</sup> の透明電極が塗布されている。液晶分子の初期の水平配向は、ラビング法<sup>13)</sup>によって得た。透明電極付きガラスの表面に水平配向剤 (polyimide) をコーティングし、繊維でラビングすることによって、液晶分子を  $x$  方向に水平配向させた。したがって、§ 1.2 で述べたように  $y$  方向にロール軸を持った対流が起き、Williams domain も  $y$  軸方向に形成される。ガラス板の間にギャップをとるためのスペーサー (PET film) の間に狭いチャンネルをつくり、そこに液晶を封入する。液晶が封入された部分の大きさは、 $L_x = 1 \text{ cm}$ ,  $L_y = 80 \mu\text{m}$ ,  $L_z = 50 \mu\text{m}$ 、したがって、アスペクト比は、 $\Gamma_x = 200$ ,  $\Gamma_y = 1.6$  である。 $\Gamma_y$  は充分小さく、かつ  $\Gamma_x$  は  $\Gamma_y$  よりずっと大きいので、長さの短い多数のロールが形成される。また実際に観測した領域は、 $x$  方向の境界から充分離れていて、セル全体の約 8% を占めるだけなので、境界条件の影響を受けていないパターン形成過程を観測することができる。

図2-2には2次元系におけるパターン形成過程を観測するためのセルの概略図を示す。液晶が封入された部分の大きさは、 $L_x = L_y = 1 \text{ cm}$ ,  $L_z = 50 \mu\text{m}$ 、したがって、アスペクト比は、 $\Gamma_x = \Gamma_y = 200$  である。2次元系の場合も同様に、観測した領域は  $x$ ,  $y$  方向の境界から充分離れていて、パターン形成過程は境界条件の影響を受けていないと考えられる。

<sup>13)</sup>  $\text{In}_2\text{O}_3$  と  $\text{Sn}_2\text{O}_3$  との混合膜。

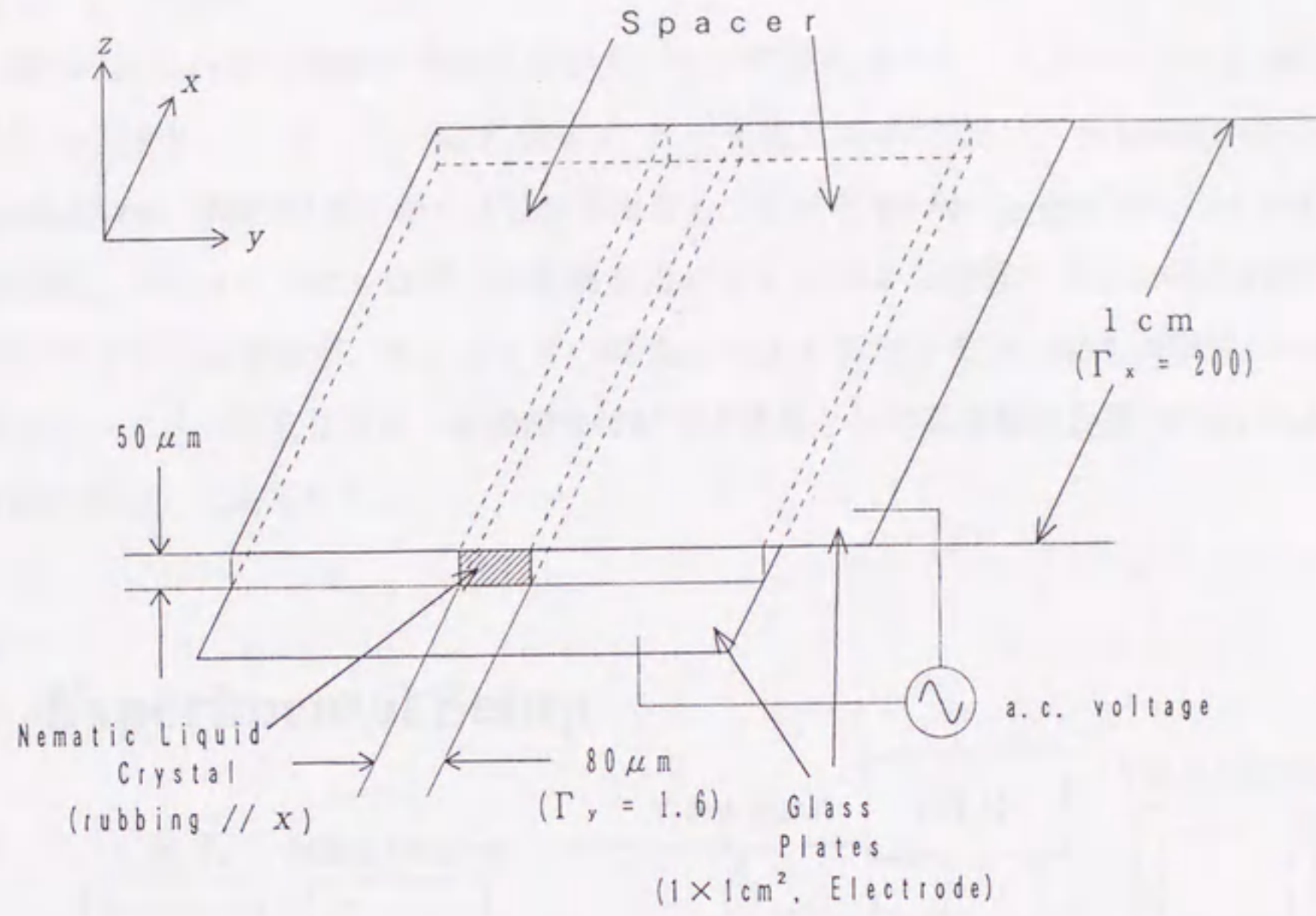


図2-1 1次元的大アスペクト比系を作るためのセル.

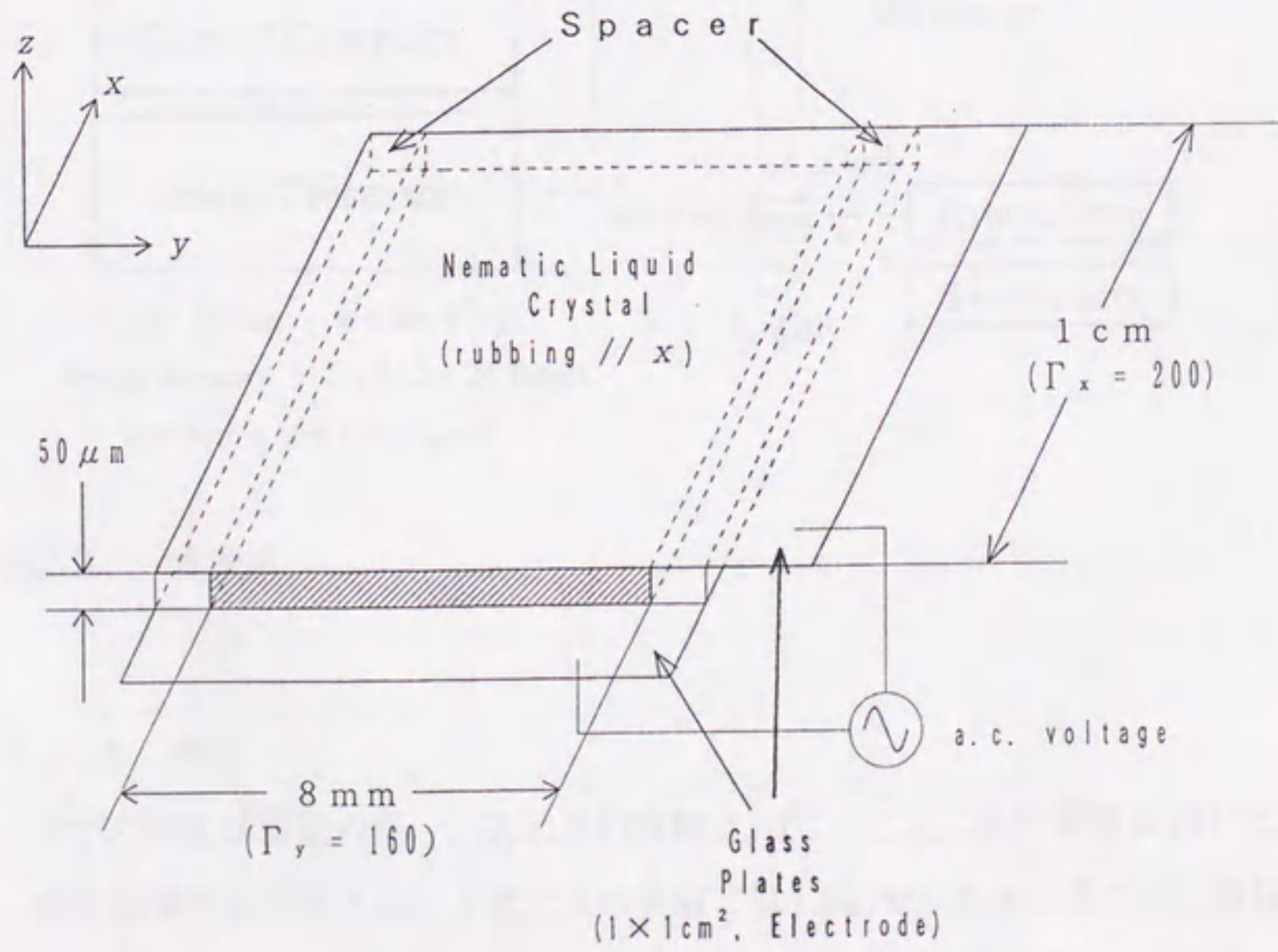


図2-2 2次元的大アスペクト比系を作るためのセル.



## 2.2.3 実験系

図2-3にこの章の実験の実験系を示す。セルの温度はホット・ステージ (Linkam TH-600PR) によって一定に保たれた。交流電場の印加は、multifunction synthesizer (NF 1920) から正弦波を出力し、それを power amplifier (NF 4005) で増幅して行った。セルは偏光顕微鏡を用いて  $z$  方向から観察される。偏光顕微鏡のアナライザは使用せず、ポラライザの偏光方向は  $x$  方向である。偏光顕微鏡には白黒ビデオ・カメラを取り付け、顕微鏡像はビデオ信号として画像解析装置 (Carl Zeiss, Vidas Plus) に送られる。

## Experimental Setup

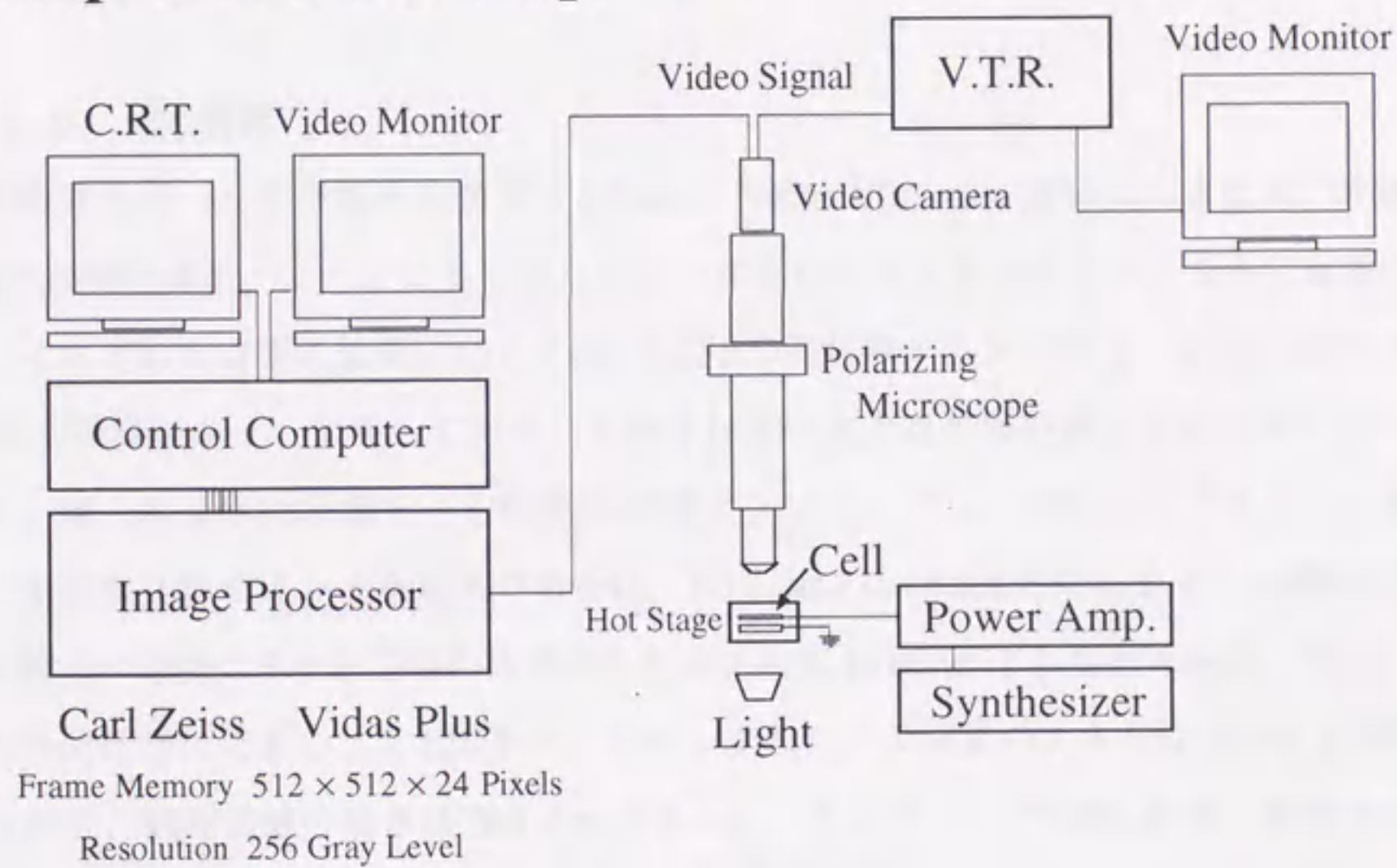


図2-3 実験系。

## 2.2.4 測定

セルの温度は測定の間、1次元系の実験は30℃、2次元系の実験は40℃に保った。

印加電場の周波数  $f$  は、1次元系の実験では1.0kHz、2次元系では2.0kHzに固定した。初期条件として2種類の状態を選んだ。ひとつは電場ゼロ、すなわち流れのない静止状態である。ただし液晶分子は、平均的に平行配向状態を保ちながら熱揺動して

いる。もうひとつは高電場（印加電圧  $V = 30.0 \text{ V}_{\text{rms}}$ ），すなわち乱流状態で，平行配向も保たれておらず強く乱れた状態である。これらはどちらも空間的に不規則に変動する状態だが，波数分布と振幅に大きな違いがある。これらの初期状態から primary instability のしきい値のわずかに上の電圧にジャンプさせ，最終的に静的な1次元周期パターンへ至る過程を画像解析装置を用いて観測した。そのジャンプさせる電圧は，1次元系，2次元系ともに  $V = 12.0 \text{ V}_{\text{rms}}$  とした。初期状態を1分以上保持し，それから電圧をジャンプさせた。初期条件が乱流の場合は，測定終了後30秒間電圧をゼロにし，それから次の測定を行った。

§ 1.2 で述べたように，Williams domain には2種類の実像と1種類の虚像が観察されるが，本研究ではすべて，profile が最も単純で正弦波に近い空間変動を示す虚像を観測した。したがって，profile におけるピークはロール軸の位置を示す。

#### 2.2.5 画像解析

本研究で用いた画像解析装置 Carl Zeiss, Vidas Plus は，送られてきたビデオ画像を256階調の濃淡パターンとして取り込む。すなわちビデオ画像をいくつかの画素に分け，それぞれの画素に濃淡に応じて0から255の整数値が与えられる。また，6291456画素の画像メモリーを有しており，それを任意の大きさに等分割して用いることができる。送られてきた画像を一定時間間隔でサンプリングし，分割したメモリーに蓄える。本章の実験では，1次元系の場合は，Williams domain の中心を通る  $x$  軸に平行な直線上の濃淡のみを512個の画素からなる1次元 profile として取り込み，さらにそれを時間経過にともなって128本サンプリングした。1画素の大きさは  $\Delta x = 1.543 \mu\text{m}$  なので，観測領域の長さは  $790 \mu\text{m}$  であった。サンプリング時間  $\Delta t$  は，電場ゼロの初期条件に対しては1.0 sec，乱流状態の初期条件に対しては2.0 sec とした。また2次元の場合は，観察領域全体を  $256 \times 256$  個の画素からなる2次元 profile として取り込み，それを時間経過にともなって96枚サンプリングした。1画素の大きさは  $\Delta x = \Delta y = 4.65 \mu\text{m}$  なので，観測領域の面積は  $1.19 \times 1.19 \text{ m}^2$  であった。パターン形成過程の初めの約30秒間で比較的速やかに起こる現象と，それから数分間でゆっくりと起こる現象の両方を確実に観測するために，2次元系ではどちらの初期条件に対しても  $\Delta t = 0.4 \text{ sec}$  と  $\Delta t = 4.0 \text{ sec}$  の2種類の測定を行った。

初期状態が電場ゼロであっても乱流状態であっても，パターンの発展過程にはその

初期状態に含まれるゆらぎが反映され、ばらつきが生じると考えられる。したがって本質的な情報を得るためには平均的なふるまいを調べる必要がある。そこで、1次元系では96回、2次元系では50回の繰返し測定を行った。§ 1.2で述べたように、EHCでは応答の時間スケールがRB対流の場合よりも短く、繰返し測定に適していると考えられる。結局1回の実験で、1次元系では128本×96回=12288本の1次元profileを、2次元系では96枚×50回=4800枚の2次元profileを画像解析装置に取り込み、それぞれのprofileにFirst Fourier Transformation (FFT)を施した。FFTの計算結果から、さらに1次元、2次元パワースペクトルを計算し、各時刻毎に平均した。1次元系では96回の測定が終了してからパワースペクトルを計算したが、2次元系では、画像メモリーを有効に使うために、1回の測定が終了するたびにパワースペクトルを計算する必要があった。Carl Zeiss, Vidas Plusは“array processor”を備えており、画像どうしの演算が行えるため、256×256画素の画像の2次元パワースペクトルを数秒で計算することができる。2次元画像を扱う際には、データが非常に大きくなることに注意しなければならないが、実験装置の発達によって画像データの演算・保存が速やかに確実にできるようになった。そのことも、繰返し測定を行うためには非常に重要な点である。

画像解析装置を制御するコンピュータは synthesizer や digital voltmeter とともに GPIB で接続されており、測定は自動化して行われた。これにより繰返し測定は全く同一の条件で行うことができる。

## § 2.3 結果と考察

### 2.3.1 1次元系における形成過程

図2-4に1次元系における1次元周期をもった静的なパターン、すなわち Williams domain を示す ( $V = 12.0 V_{rms}$ )。図2-5には、1次元系における Williams domain の形成過程が、パターンの濃淡の1次元profileの時間変化として描かれている。横軸は、Williams domain の中心を垂直に横切る直線上の位置  $x$  で、縦軸は画像の濃淡として描かれている。一定時間間隔でサンプリングされた1次元profileが、時間の

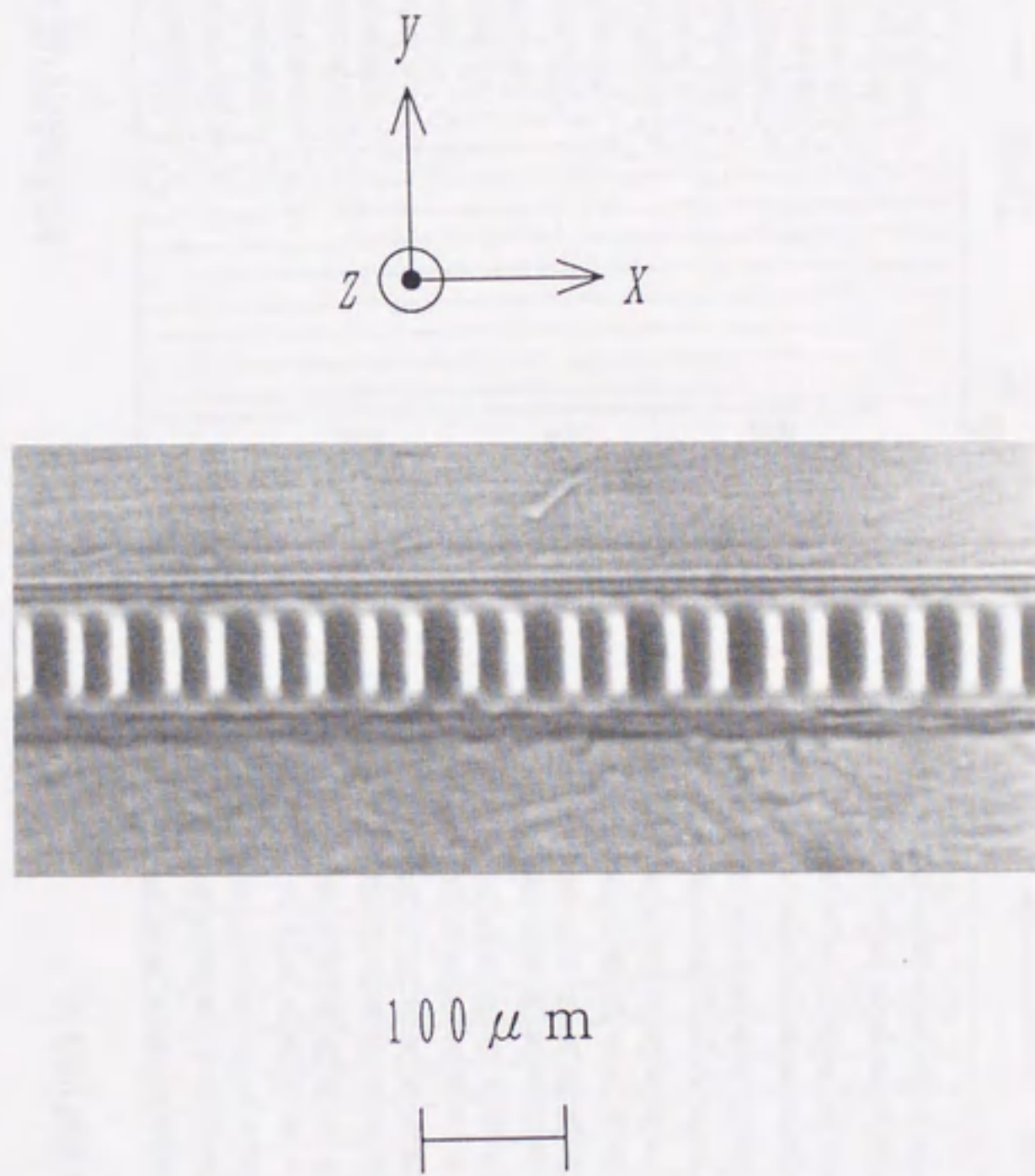


図2-4 1次元系における Williams domain.

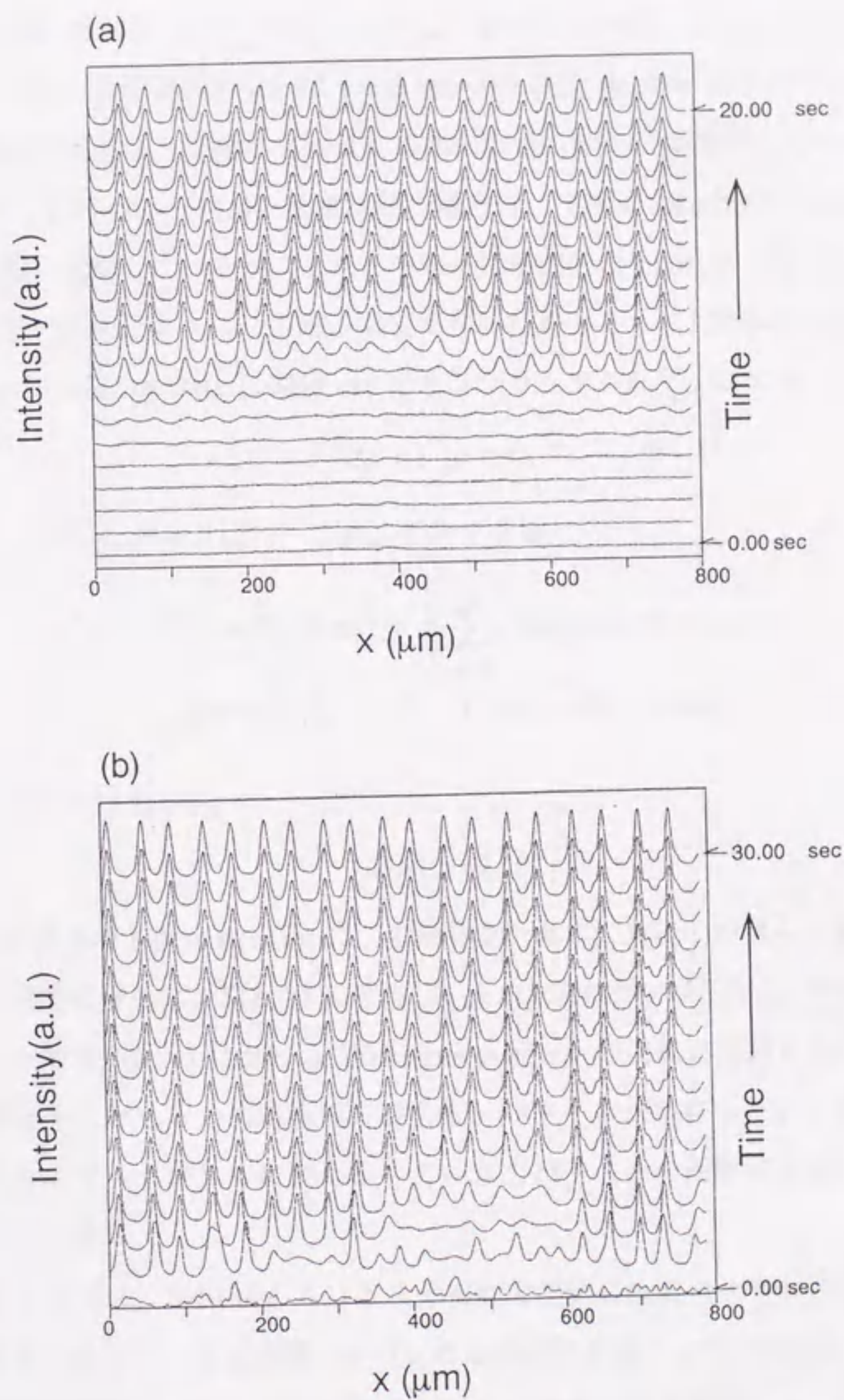


図2-5 1次元系における Williams domain の形成過程. パターンの濃淡の1次元 profile が, 時間経過とともに下から上へ描かれている. (a); 電場ゼロの初期状態. (b); 乱流の初期状態.

経過とともに下から上へ並べられている。時刻  $t = 0$  sec では、印加電圧がそれぞれの初期条件から  $V = 12.0 V_{\text{rms}}$  へジャンプし、また1本目の1次元 profile がサンプリングされている。初期条件の違いは  $t = 0$  sec の1次元 profile に現れている。電場ゼロの初期条件の場合は、対流ロールは初め系内のいくつかの領域から現れ、それから徐々に系全体へ広がっていく(a)。乱流状態の場合は、1次元 profile は初期には有限の振幅で不規則に変動しているが、それから徐々に規則的な profile に変化していく(b)。

2.2.5で述べたように、1回の測定で時間経過とともに128本の1次元 profile が得られる。1次元 profile は間隔  $\Delta x$  でサンプリングされているので、

$$I(x) = I(\Delta x \cdot n) \quad (n = 0, 1, \dots, N-1) \quad (2.2)$$

と書ける (ただし  $N = 512$ )。これにFFTを施し、

$$\hat{I}(k) = \hat{I}(\Delta k \cdot m) = \frac{1}{N} \sum_{n=0}^{N-1} I(n) \exp(-i2\pi mn/N) \quad (2.3)$$

$$(m = 0, 1, \dots, N-1, \Delta k = 2\pi / N \cdot \Delta x)$$

となる。さらに(2.3)から、

$$S(k) = |\hat{I}(k)|^2 \quad (2.4)$$

を得る。128本の1次元 profile にこの計算を行えば、 $S(k, t)$  が得られる。そして96回の繰返し測定に対して、 $S(k, t)$  の平均  $S_{\text{av}}(k, t)$  を求めた。図2-6に、平均の1次元パワースペクトル  $S_{\text{av}}(k, t)$  における Williams domain の明線の周期を表わすピークの時間変化を示す。どちらの初期条件の場合も、パターンが成長していく過程で、時間の経過とともにピークが徐々に鋭くなっていき、パターンの周期性が高くなっていくことを示している。

上述したように、Schober らは1次元振幅方程式に振幅の小さい不規則に変動する初期条件を与えて、1次元周期パターンの形成過程を調べた<sup>5)</sup>。彼らは、系の初期条件が最終的に到達するパターンの周期に影響を及ぼすことを見出した。初期条件の平均の波数が大きくなればなるほど、最終パターンの周期も大きくなる。この傾向は、初期条件の振幅が大きいほど顕著になる。本実験では、図2-6(a)の最終パターンの波数に相当するピークの位置は、(b)におけるピークよりもわずかに高波数側にある。つまり、振幅方程式と同様に、初期条件の違いが最終パターンの波数に影響を及ぼしていることがわかる。電場ゼロの状態は、液晶分子の熱揺動によって初期の不規則変動状

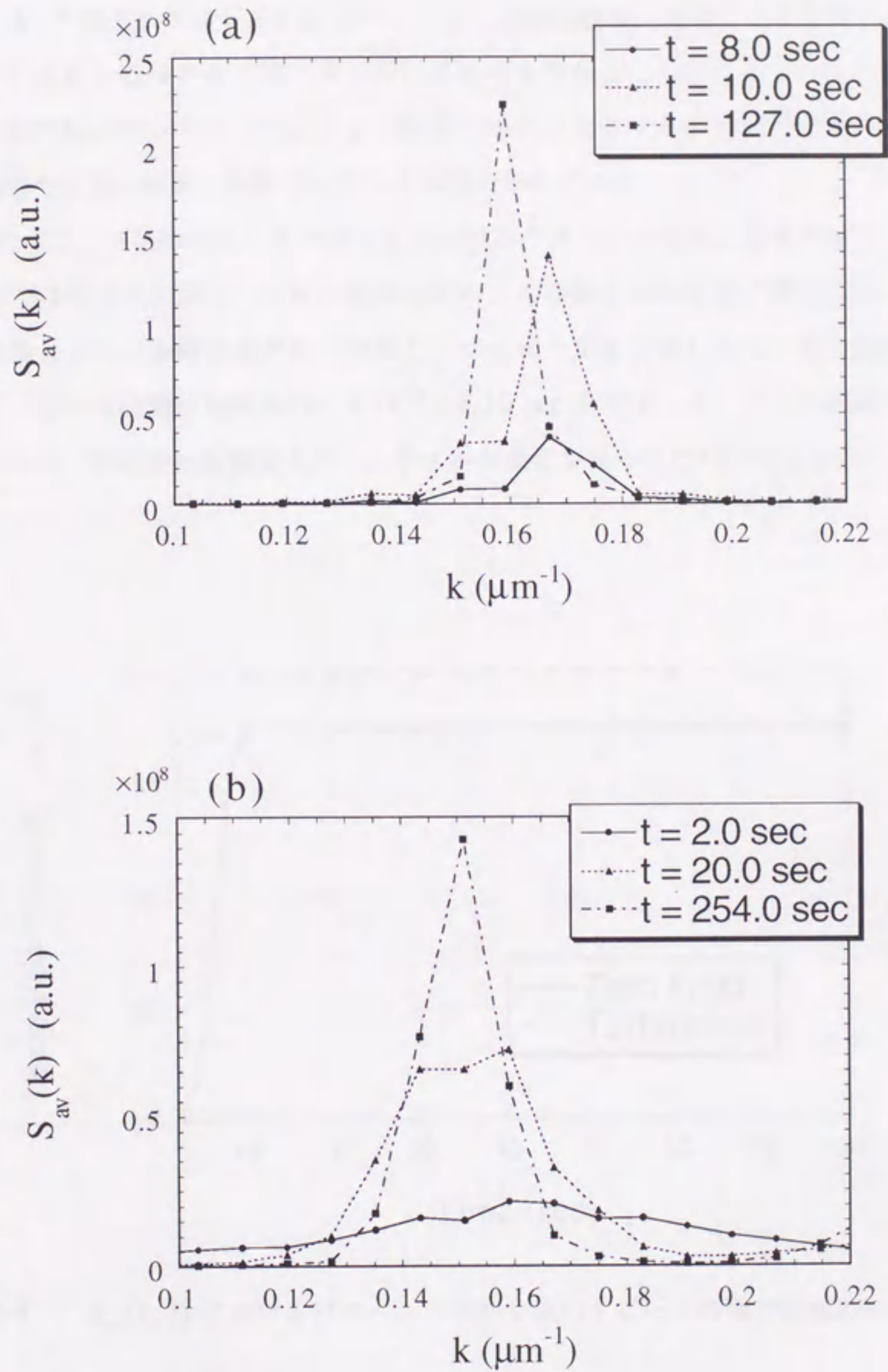


図2-6 平均の1次元パワースペクトル  $S_{av}(k, t)$  の時間発展. ただし Williams domain の明線の周期を表わすピークの周辺だけを示す. (a); 電場ゼロの初期状態. (b); 乱流の初期状態.

態を生じる。ネマティック液晶の熱揺動は、振幅が小さく、波数分布は広い領域にわたり  $k^{-2}$  型のスペクトルを示す<sup>14)</sup>。一方、乱流状態は、電場ゼロと比較して、振幅は大きく波数分布はかなり狭くなっていると考えられる。しかしながら、この実験結果を振幅方程式のシミュレーションの結果と単純に比較することはできない。初期条件の振幅や波数を細かく制御することが困難だからである。

図2-7は、平均のパワースペクトルにおけるパターンの周期に相当するピークの積分強度の時間変化を示す。これは周期パターンの振幅の時間発展に相当する。両初期条件の場合とも、振幅は速やかに成長し、すぐに一定値に落ち着く。また振幅が飽和するのに要する時間は初期条件によらず、約10 sec 程であった。ただし乱流の初期条件の場合は、初めから振幅は大きく、わずかな成長が見られただけであった。

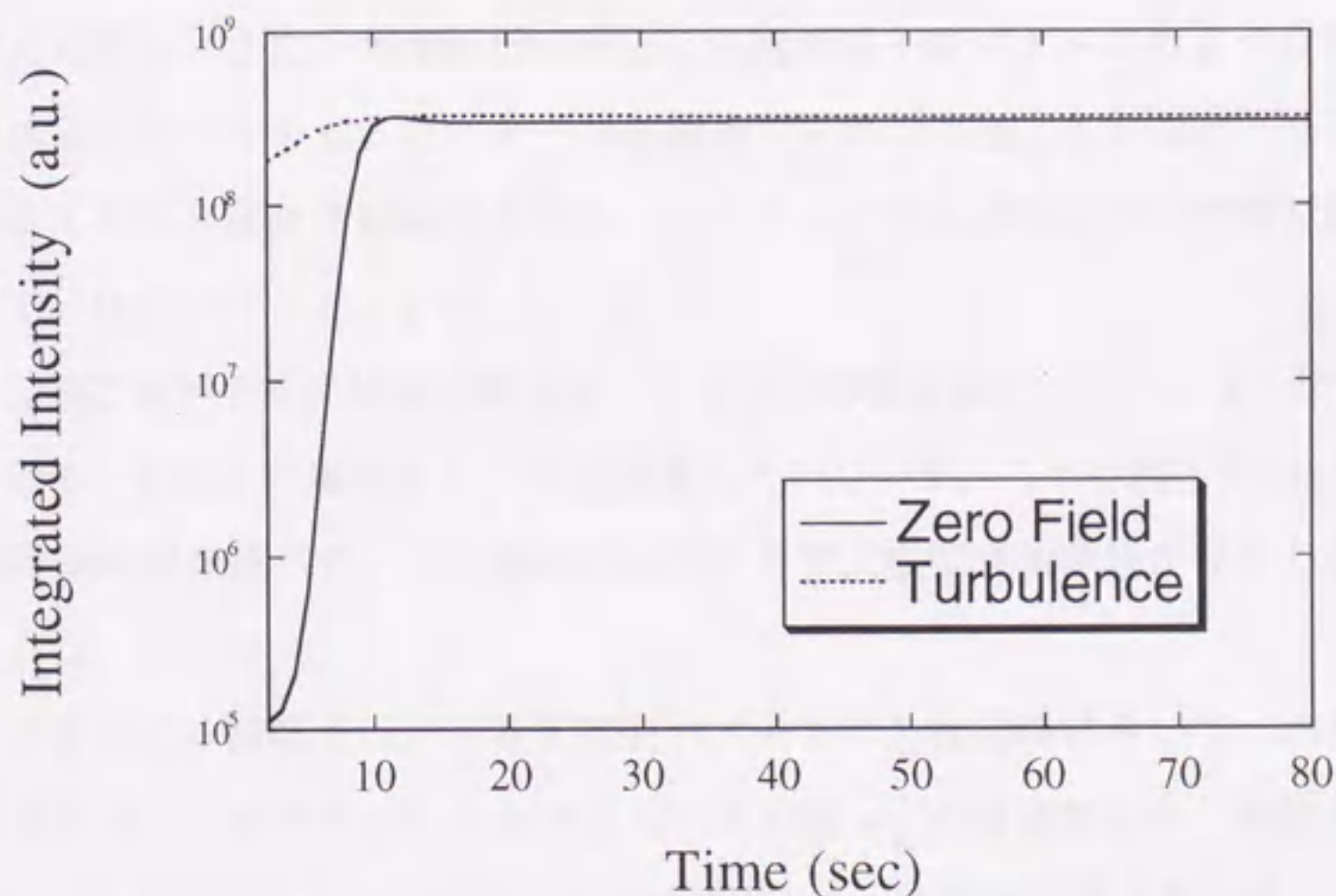


図2-7  $S_{av}(k, t)$  におけるパターンの周期を表わすピークの積分強度の時間変化。

図2-6に見られたように、パターンの周期性が成長するにつれ、パワースペクトルのピークが鋭くなっていく。Schober らは、パワースペクトルにおけるピーク幅  $w_k$  を次のように定義し、その時間変化を振幅方程式の数値シミュレーションから計算した。



$$w_k = \left[ \frac{\sum_k k^2 S_{av}(k)}{\sum_k S_{av}(k)} - \left( \frac{\sum_k k S_{av}(k)}{\sum_k S_{av}(k)} \right)^2 \right]^{1/2} \quad (2.5)$$

これは波数の2乗平均に相当する。彼らは、 $w_k$  の時間変化は、振幅が成長する初期段階では  $t^{-1/2}$  に比例し、振幅が一定になってからは  $t^{-1/4}$  に比例するという結果を得た。図2-8は、本実験結果に対して計算した  $w_k$  の時間変化を示す。どちらの図でも、破線は  $t^{-1/4}$  則を表わす傾き-1/4の直線である。

図2-8(a)の電場ゼロの場合、 $w_k$  は複雑な変化を見せるが、 $t = 60$  sec 辺り以降は  $t^{-1/4}$  則に従っている。電場ゼロの場合、上述のように振幅が小さく  $k^{-2}$  型の広い波数分布をもった液晶分子の熱揺動が、primary instability を引き起こす初期の攪乱になる。一方 Schober らの数値シミュレーションの初期条件は、波数分布が最終的な周期パターンの波数を中心としたガウス分布になるようにして与えられている<sup>5)</sup>。その分布は熱揺動の分布よりも拡がり小さく分布の型も異なるため、 $t^{-1/2}$  則が現れなかったものと考えられる。また、画像解析の手法は非線形非平衡パターンのような時間空間的にマクロなスケールをもったパターンを観測するには適しているが、分子の熱揺動のようなミクロな現象は観測できない。したがって形成過程のごく初期段階を的確に観測していないということも考えられる。

一方図2-8(b)の乱流状態の場合は、すべての時間領域にわたって  $w_k$  は  $t^{-1/4}$  則に従っている。またこの場合も  $t^{-1/2}$  則は現れていないが、これは図2-7で見たように初期状態の振幅が最終パターンの振幅とほぼ同じで、振幅成長領域が存在しないためと考えられる。

このように本研究では、1次元周期パターンの形成過程において、パターンの周期を表わすパワースペクトルにおけるピークの幅  $w_k$  の時間変化が、初期条件に関わらず、 $t^{-1/4}$  則に従うことを実験において見出した。振幅成長期を経た後、パターンは局所的に周期性をもつようになり、そのとき1次元 profile  $I(x)$  は

$$I(x) = R(x) \cos[k_0 x + \phi(x)] + \text{higher-harmonics} \quad (2.6)$$

と書ける。もし  $I(x)$  が系全体で周期的になると、局所的な振幅  $R(x)$  と位相  $\phi(x)$  は一定になり  $x$  に依存しなくなる。(2.6) の  $I(x)$  を (2.1) の秩序パラメータとして代入し適当な近似を行うと、 $\phi(x)$  に関する拡散方程式が導かれるが、Schober らはその

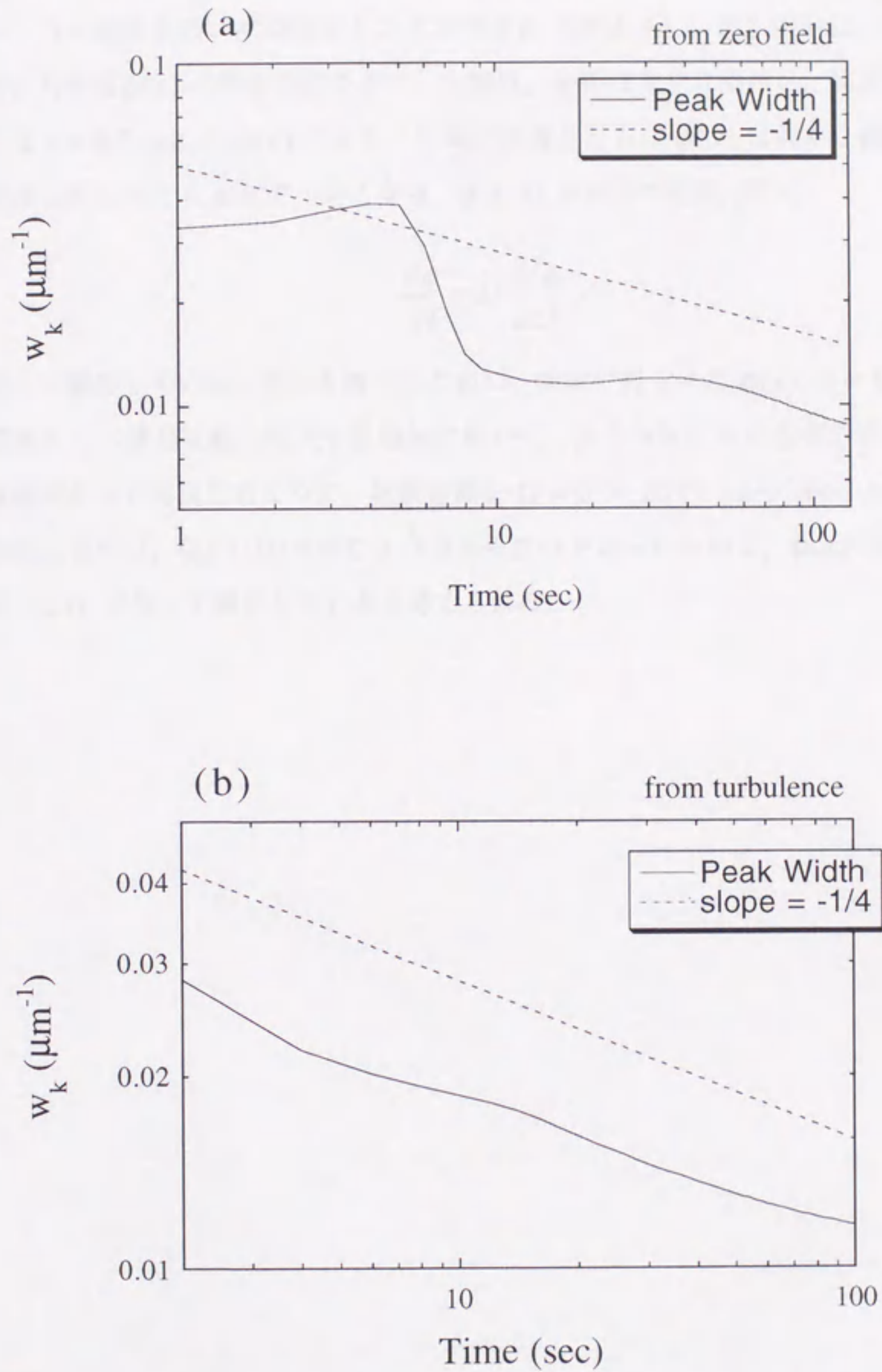


図2-8 式 (2.5) で定義された,  $S_{av}(k, t)$  におけるピークの幅  $w_k$  の時間変化. 破線は傾き-1/4の直線で,  $t^{-1/4}$  則を示す. (a); 電場ゼロの初期状態. (b); 乱流の初期状態.

拡散方程式から  $t^{-1/4}$  則を理論的に導いた<sup>5)</sup>。  $\phi(x)$  は実験で得られた1次元 profile からフーリエ変換を用いて抽出することができる (補記 A)。 図2-9(a)は、乱流の初期条件に対する  $\phi(x)$  の時間変化を示す。太線は、振幅は十分に飽和し、局所的に周期的になる  $t = 8.0 \text{ sec}$  の  $\phi(x)$  である。時間の経過とともに  $\phi(x)$  は徐々に緩和していき、最後はほとんど  $x$  によらず一定になる。  $\phi(x, t)$  が線形の拡散方程式、

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = D \frac{\partial^2 \phi}{\partial x^2}, \quad (2.7)$$

に従って緩和しているか否かを調べるために、実験で得られた  $\phi(x)$  ( $t = 8.0 \text{ sec}$ ) を初期値として線形拡散方程式を数値的に解いた。図2-9(b)にその数値計算結果を示す。実験結果をよく再現するように、拡散定数を  $D = 6 \times 10^{-10} \text{ (m}^2/\text{sec)}$  と概算した。大局的に見れば、(a)と(b)で同じようなふるまいが見られるので、 $\phi(x)$  は線形拡散方程式 (2.7) に従って緩和していると考えられる。

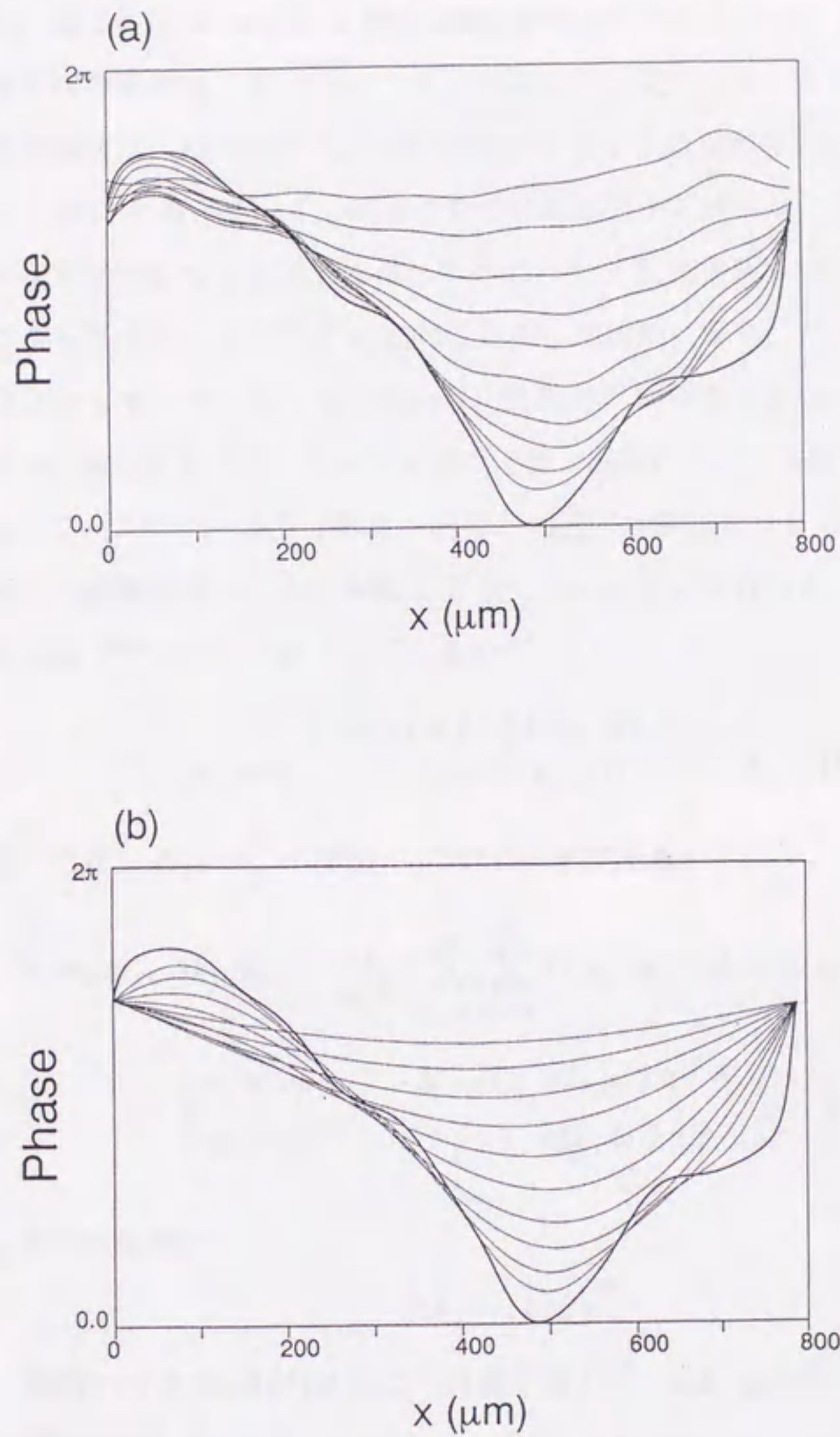


図2-9 (a); 局所的な位相  $\phi(x)$  の時間変化の実験結果. 初期値は乱流状態. 太線は局所的に周期的になる  $t = 8.0$  sec の  $\phi(x)$  で, 以下  $t = 10.0, 12.0, 16.0, 22.0, 32.0, 46.0, 64.0, 90.0, 128.0, 180.0$  sec の  $\phi(x)$  が細線で描かれている. (b); (a) の太線で描かれた  $t = 8.0$  sec の  $\phi(x)$  を初期値とする線形拡散方程式 (2.7) の数値計算結果. 実験と数値計算が合うように拡散定数を  $D = 6 \times 10^{-10}$  ( $\text{m}^2/\text{sec}$ ) とし, (a) の細線で描かれた時刻に相当する計算結果だけを描いた.

## 2.3.2 2次元系における形成過程

図2-10, 図2-11に2次元系に Williams domain が形成される過程を示す. 初期状態が電場ゼロの場合は, 系内のいくつかの領域から現れたロールが全体に広がっていく. 乱流の場合は, 初めはロールの配向方向の異なる領域が多結晶的に並んでいるが, 徐々に  $x$  方向にそろっていく. 電場ゼロの初期状態からロールが発生する場合は, 初めから1次元周期をもった状態で現れるのに対し, 乱流状態では初めは等方的な状態で, そこからまずロールがほぼ  $x$  方向にそろった状態になり, それからゆっくりと周期性を完全にしてい. どちらの場合も, 比較的早い時間で局所的に周期性をもつようになるが, あとはトポロジカルな欠陥の運動・消滅によって周期性が完全になる.

2次元パワースペクトルも1次元の場合と同様に計算した. 2.2.5で述べたように, 1回の測定で時間経過とともに96枚の2次元 profile が得られる. 2次元 profile は間隔  $\Delta x, \Delta y$  でサンプリングされているので,

$$I(x, y) = I(\Delta x \cdot n_x, \Delta y \cdot n_y) \quad (n_x = 0, 1, \dots, N_x - 1, n_y = 0, 1, \dots, N_y - 1) \quad (2.8)$$

と書ける (ただし  $N_x, N_y = 256$ ). これにFFTを施し,

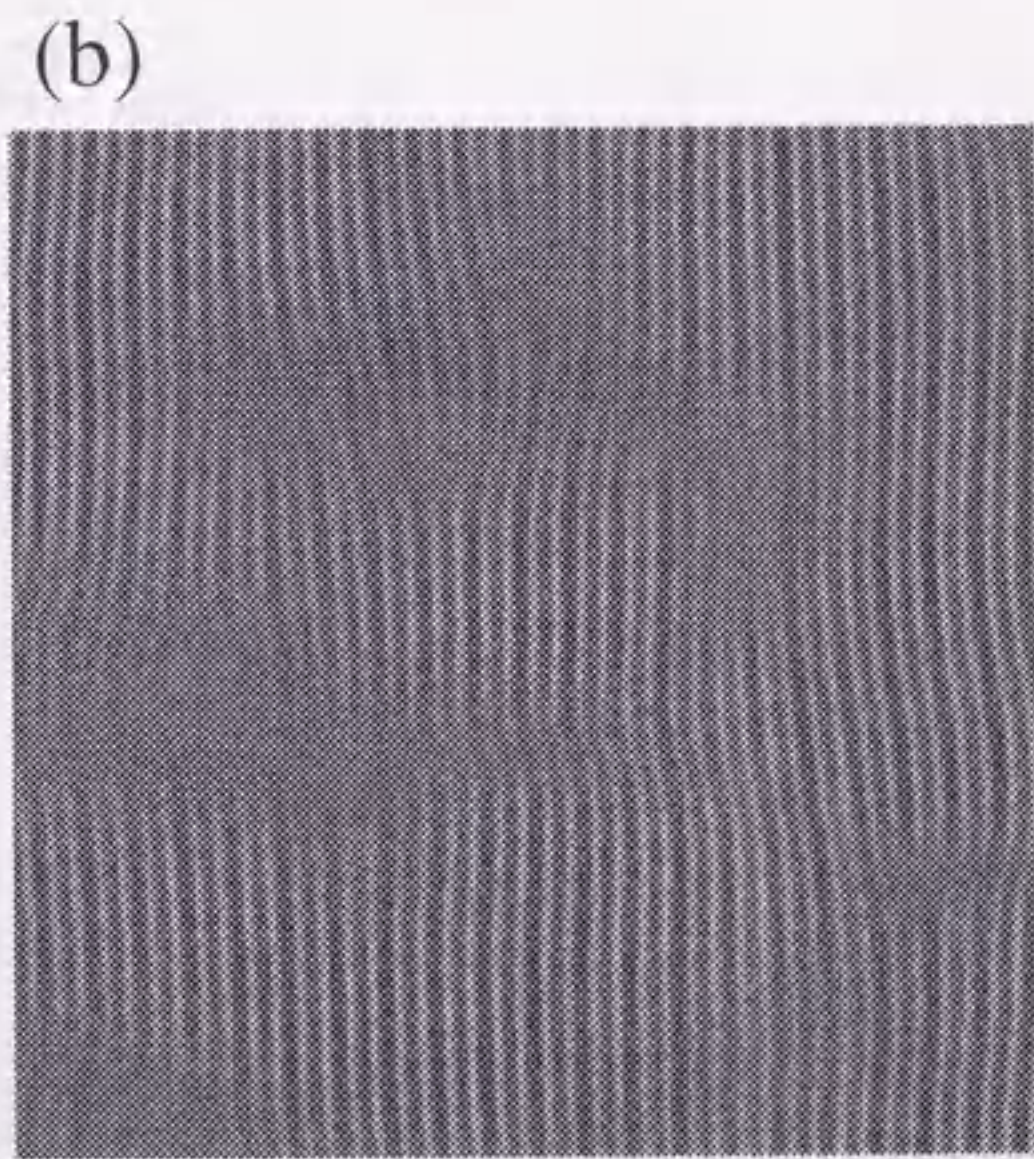
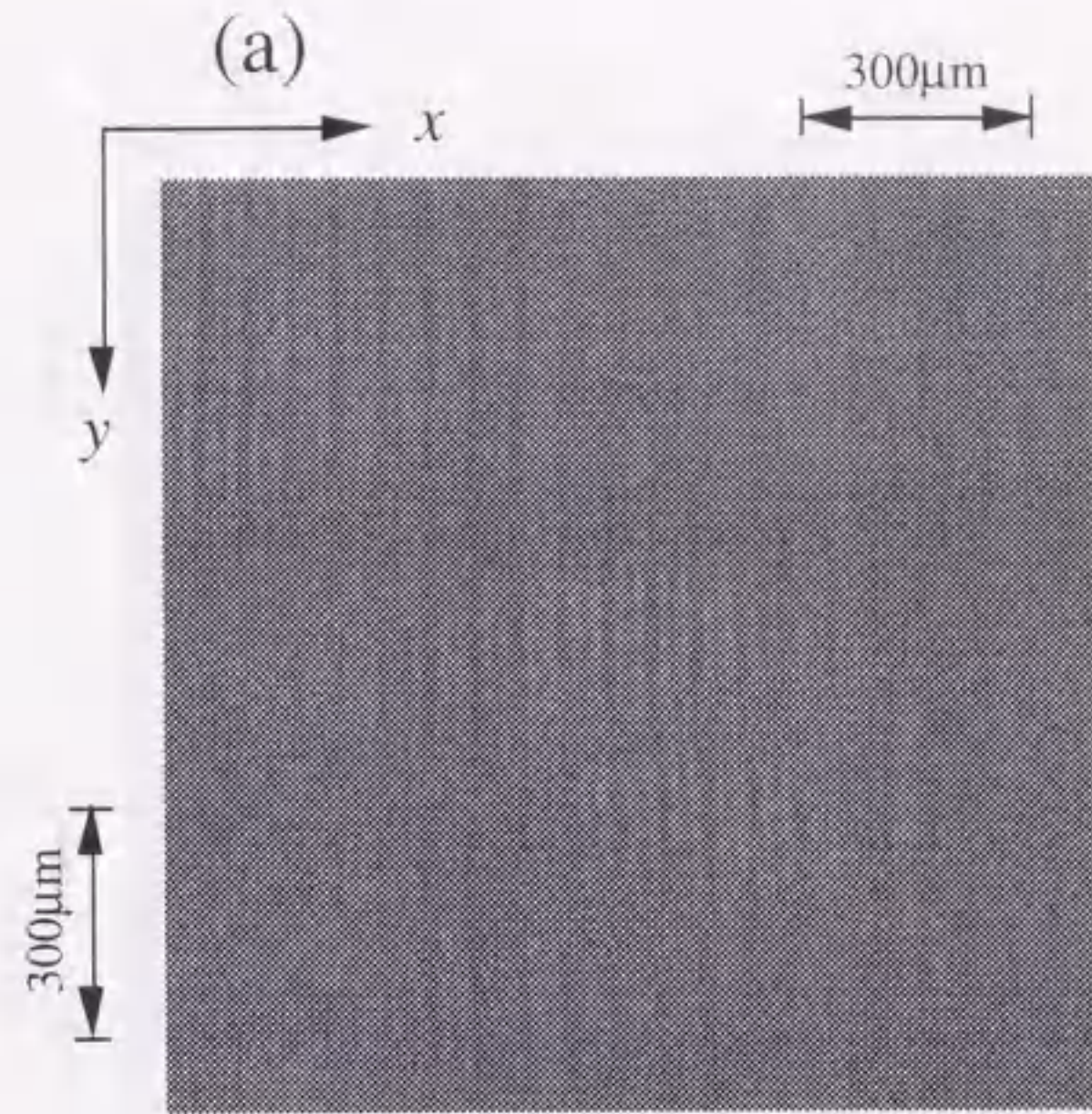
$$\hat{I}(\mathbf{k}) = \hat{I}(\Delta k_x \cdot m_x, \Delta k_y \cdot m_y) = \frac{1}{N_x N_y} \sum_{n_x=0}^{N_x} \sum_{n_y=0}^{N_y} I(n_x, n_y) \exp[-i2\pi(m_x n_x / N_x + m_y n_y / N_y)] \quad \left( \begin{array}{l} m_x = 0, 1, \dots, N_x - 1, \Delta k_x = 2\pi / N_x \cdot \Delta x, \\ m_y = 0, 1, \dots, N_y - 1, \Delta k_y = 2\pi / N_y \cdot \Delta y \end{array} \right) \quad (2.9)$$

となる. さらに(2.9)から,

$$S(\mathbf{k}) = |\hat{I}(\mathbf{k})|^2 \quad (2.10)$$

を得る. 96枚の2次元 profile にこの計算を行えば,  $S(\mathbf{k}, t)$  が得られる. そして50回の繰返し測定に対して,  $S(\mathbf{k}, t)$  の平均  $S_{av}(\mathbf{k}, t)$  を求めた.

図2-12, 図2-13に, パターン形成過程における2次元パワースペクトル  $S_{av}(\mathbf{k}, t)$  の時間変化を示す. 初期状態が電場ゼロの場合は, 初めに楕円形に広がったスポットが現れ, それから時間の経過とともにスポットが小さくなっていく. 初期状態が乱流の場合は, 多結晶的なロールの配向状態を反映して円周上に広がったスペクトル・パターンが現れる. それから時間の経過とともに, スペクトルは円周上を収縮していき,



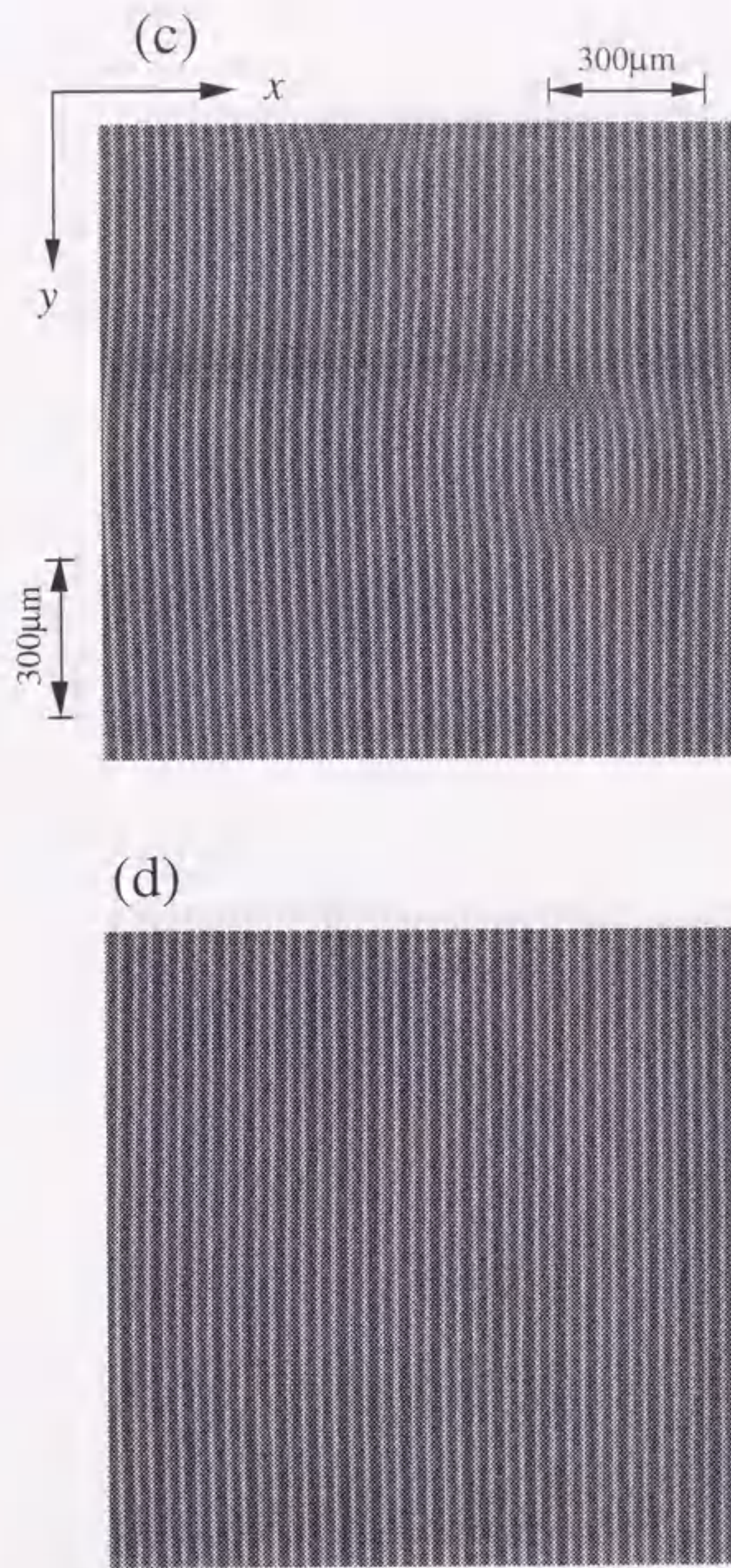
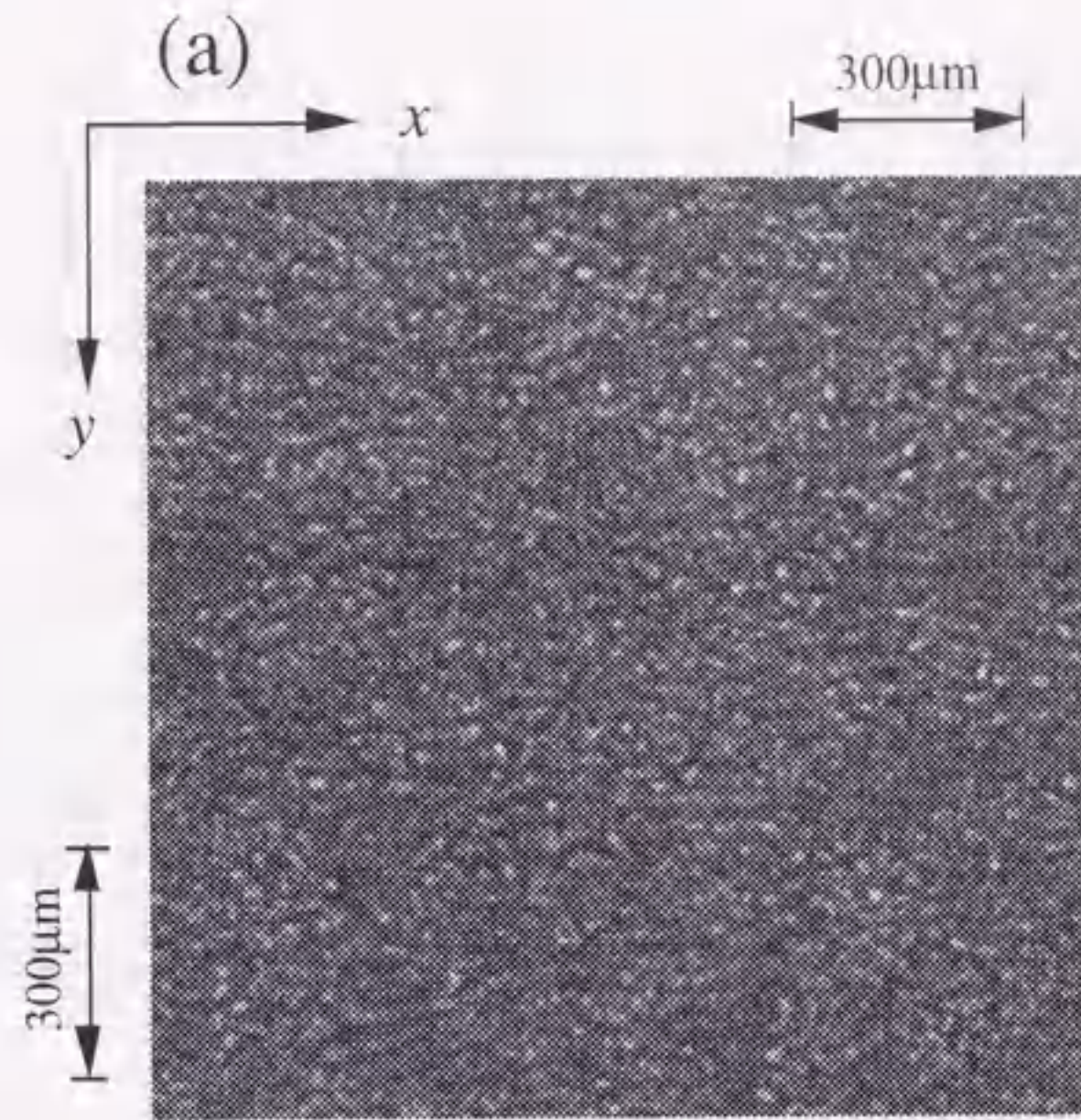


図2-10 2次元系における Williams domain の形成過程. 電場ゼロの初期状態, (a);  $t = 14$  sec, (b);  $t = 20$  sec, (c);  $t = 120$  sec, (d);  $t = 380$  sec.





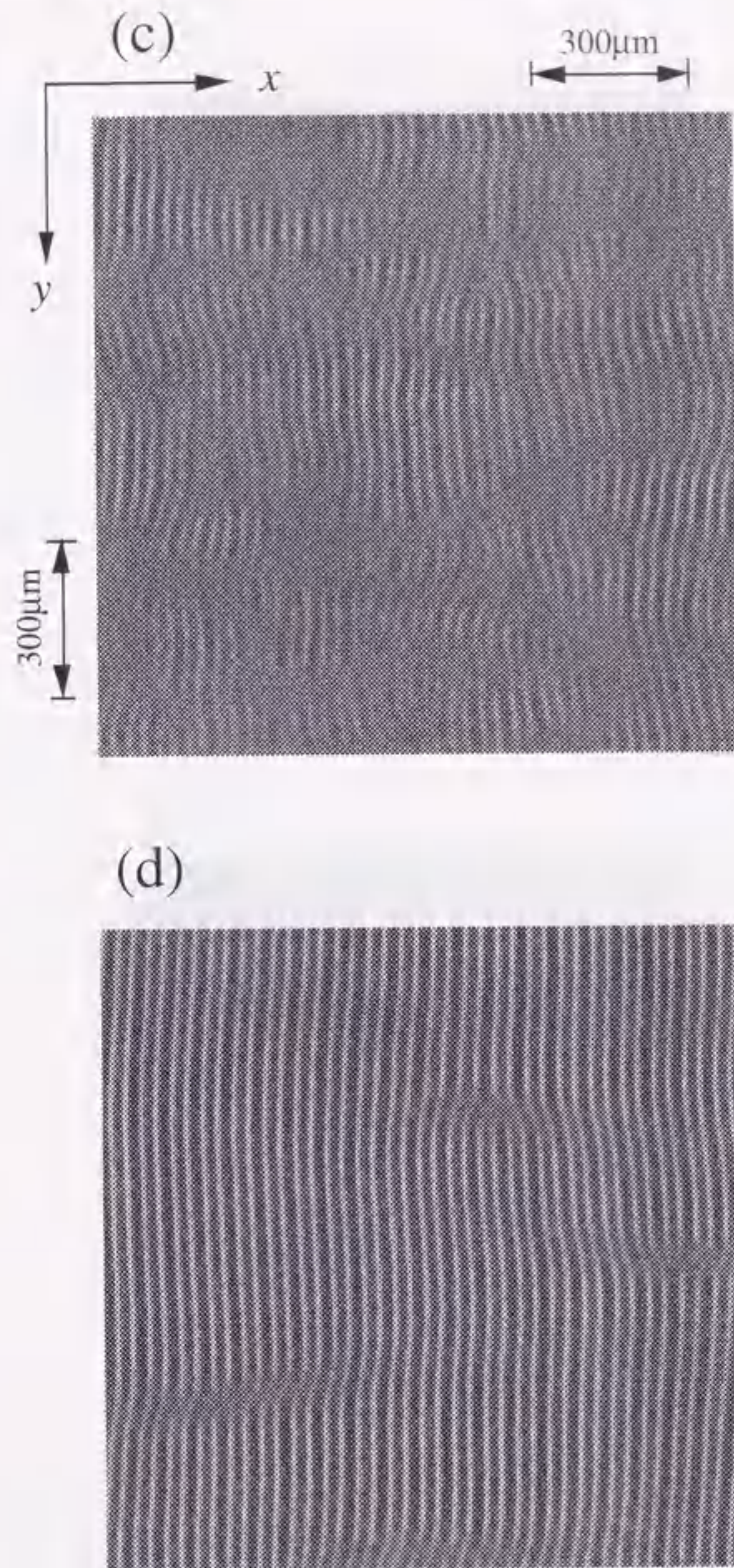


図2-11 2次元系における Williams domain の形成過程. 乱流の初期状態. (a) ;  $t = 0$  sec, (b) ;  $t = 0.4$  sec, (c) ;  $t = 4$  sec, (d) ;  $t = 40$  sec.

(a)



(b)



(c)



(d)

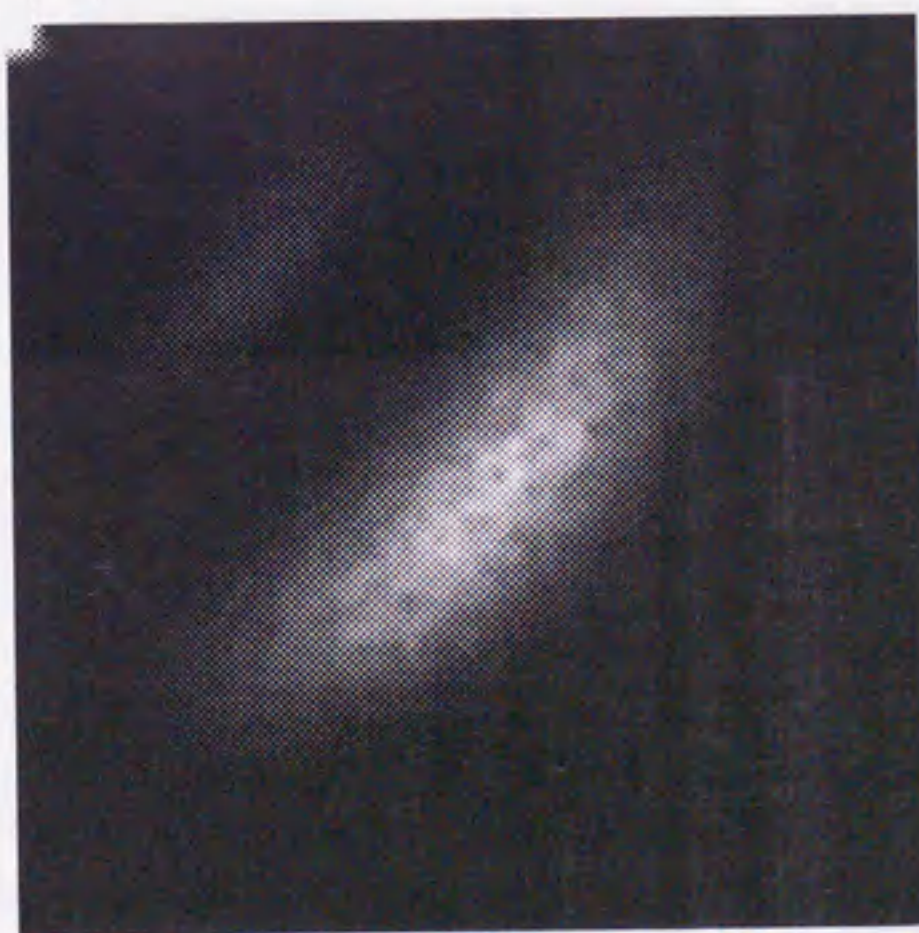


図2-12 平均の2次元パワースペクトル  $S_{av}(k, t)$  の時間発展. 電場ゼロの初期状態. ただし, 図の左上角が原点で, 1次元周期に相当するスポットが中央に位置するように Williams domain を傾けてパワースペクトルを計算した. (a);  $t = 7.6$  sec, (b);  $t = 10.8$  sec, (c);  $t = 18.8$  sec, (d);  $t = 380$  sec.

(a)



(b)



(c)



(d)



図2-13 平均の2次元パワースペクトル  $S_{av}(\mathbf{k}, t)$  の時間発展. 乱流の初期状態. (a);  $t = 0.4$  sec, (b);  $t = 1.6$  sec, (c);  $t = 3.6$  sec, (d);  $t = 380$  sec.

同時に動径方向にも収縮する。

図2-14にパターンの周期を表わすスポットの面積分強度の時間変化を示す。1次元系における積分強度の結果と同様に、両初期条件の場合とも、振幅は速やかに成長し、すぐに一定値に落ち着く。また乱流の初期条件の場合は、初めから振幅は大きく、あまり変化が見られない。

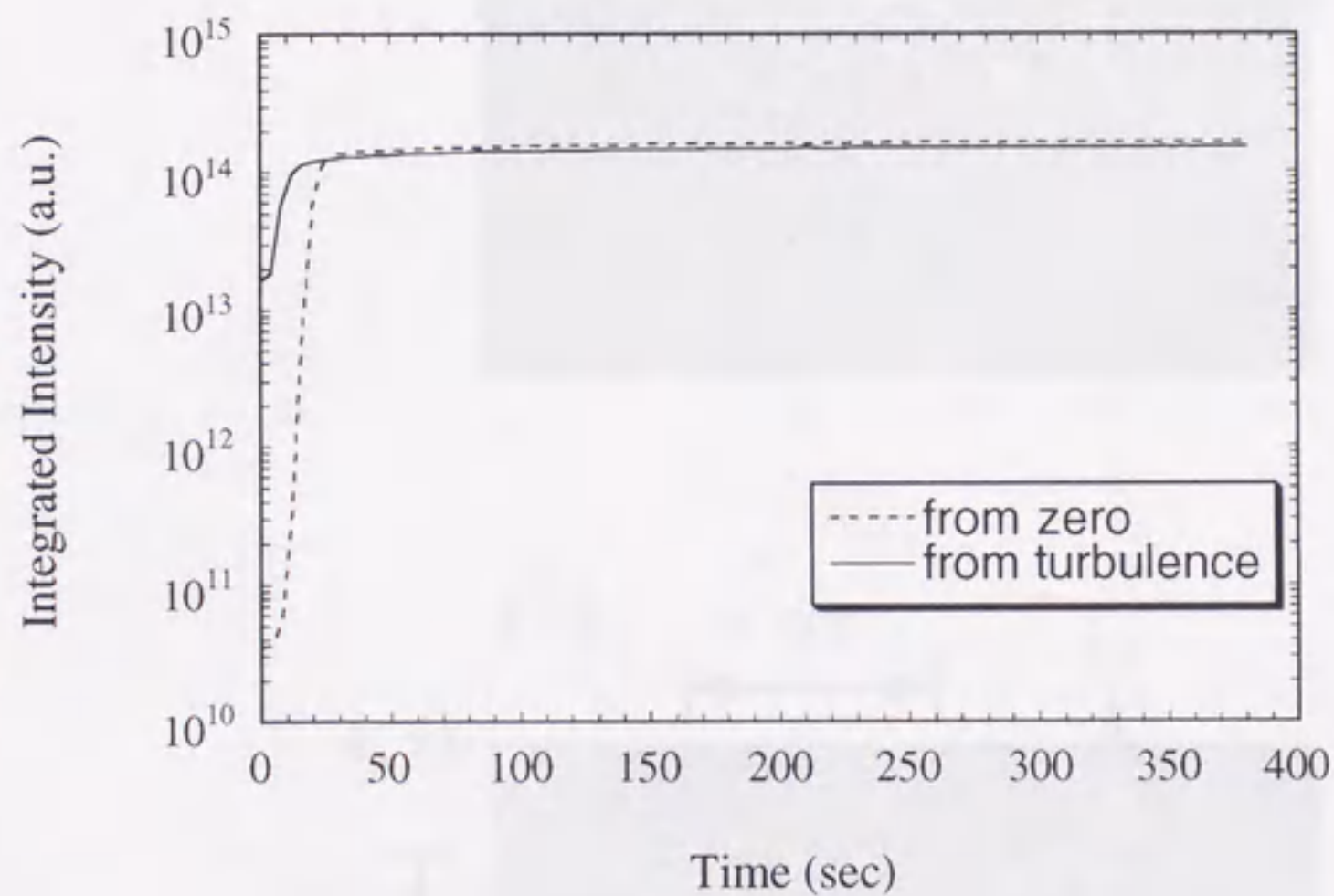


図2-14 2次元パワースペクトルにおけるパターンの周期を表わすスポットの面積分強度の時間変化。

このように、スペクトル・パターンの時間変化は初期条件による違いがあるので、それぞれの初期条件に対して図2-15のようにして座標軸をとり、1次元の場合と同様にパターンの周期に相当するピークの幅の時間変化を計算した。(a)の電場ゼロの初期状態の場合は、スポットの重心は常に原点から $45^\circ$ の方向に引いた直線上にあるので、まずこの直線上に $k_x$ 軸をとった。次に $k_x$ 軸に垂直な方向に $k_y$ 軸をとった。 $k_x$ 軸の原点は2次元パワースペクトルの原点と同様に図の左上角としたが、 $k_y$ 軸の原点は $k_x$ 軸との交点とした。(b)の乱流の初期状態の場合も、スペクトル・パターンの重心は原

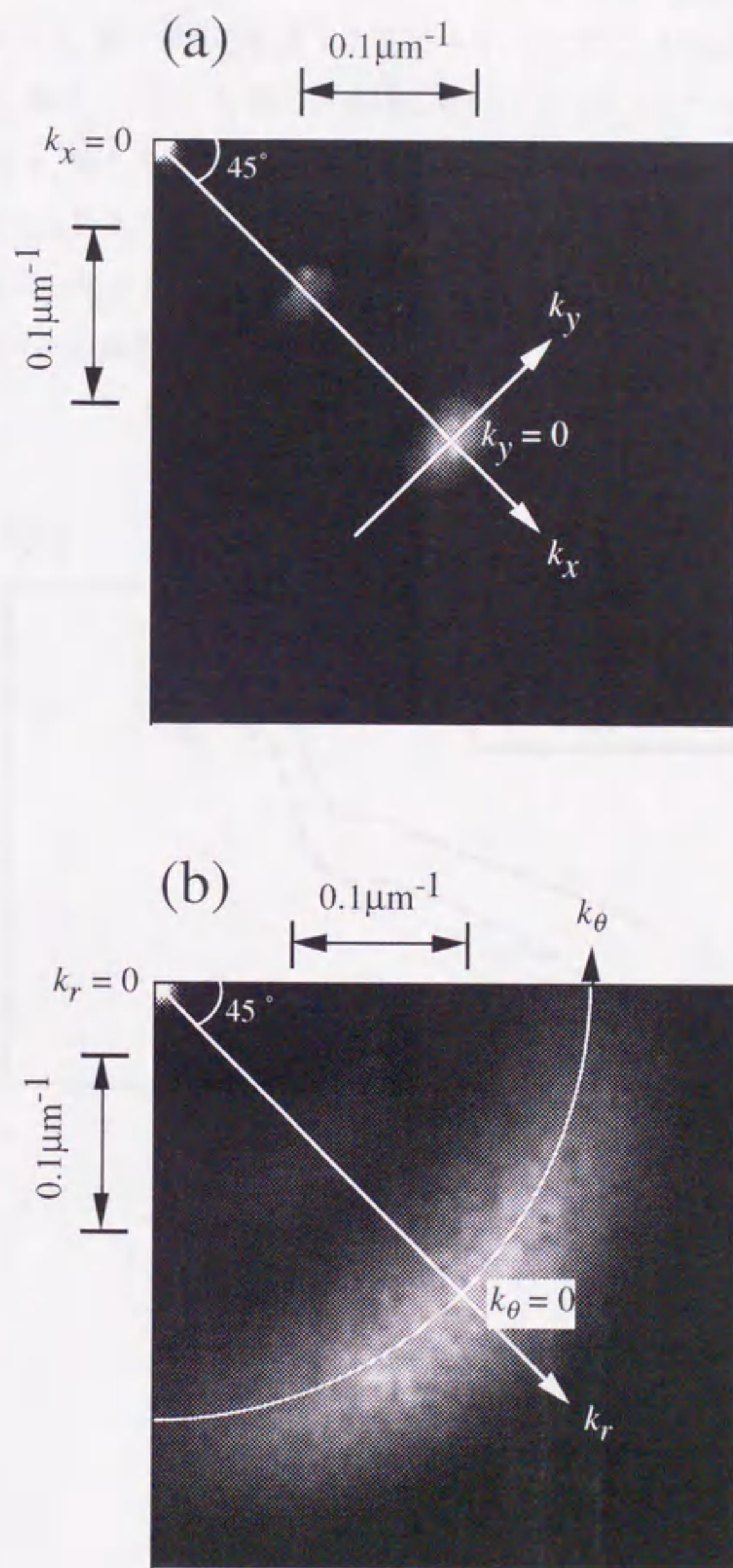
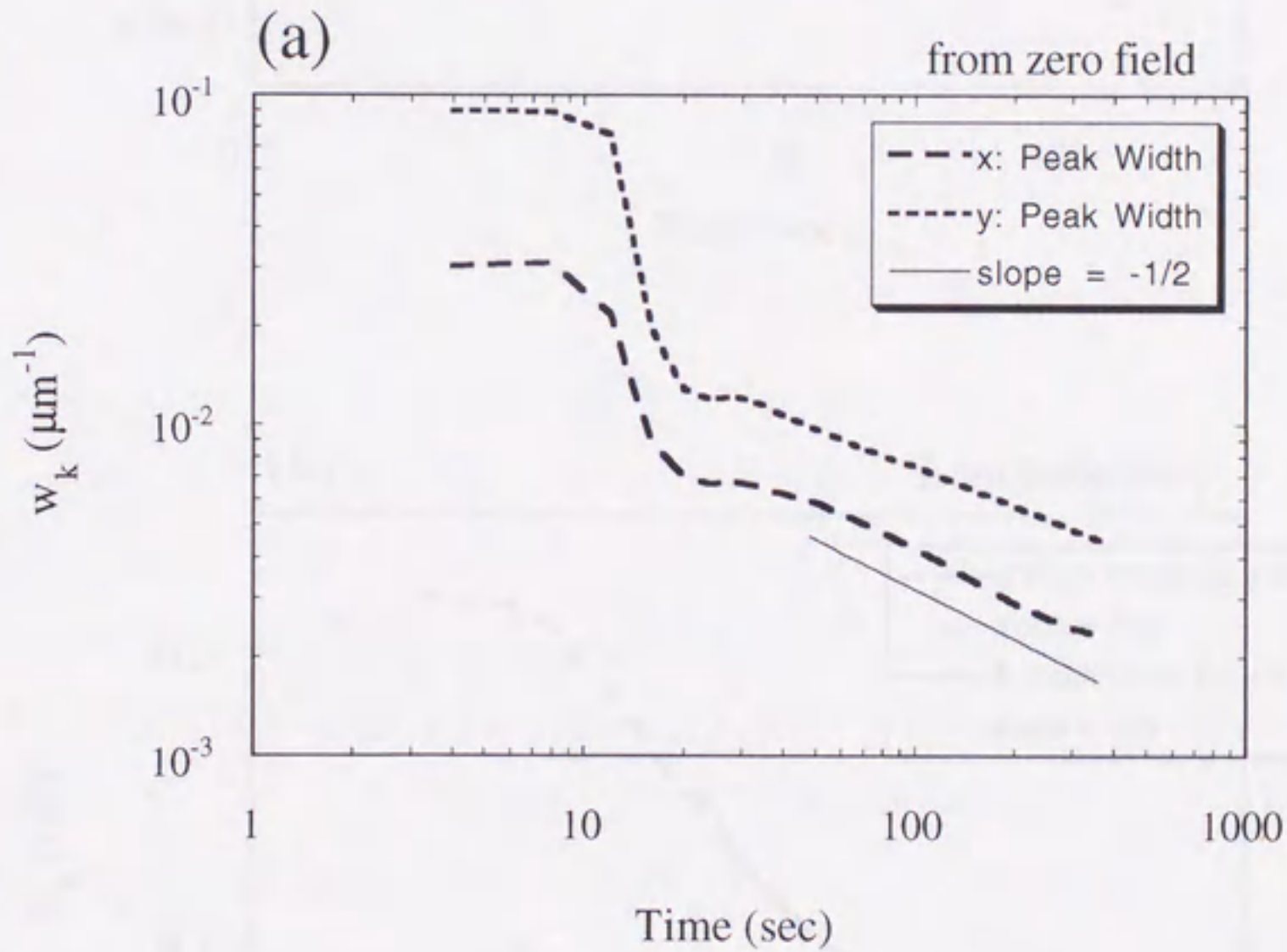


図2-15 2次元パワースペクトルにおける座標軸のとり方. (a); 電場ゼロの初期状態. (b); 乱流の初期状態.

点から $45^\circ$ の方向に引いた直線上にあるので、まずこの直線上に(a)の $k_x$ 軸と同様に $k_r$ 軸をとった。次に $k_r$ 軸上の重心を通り2次元パワースペクトルの原点を中心とする四分の一円上に $k_\theta$ 軸をとった。 $k_r$ 軸の原点は2次元パワースペクトルの原点と同じとし、 $k_\theta$ 軸の原点は $k_r$ 軸との交点とした。これらの座標軸に対して(2.5)式によってピーク幅の時間変化を計算した結果を図2-16に示す。初期状態が電場ゼロの場合は、1次元系の電場ゼロの場合と同様に複雑な変化を示し、後半は $t$ のべきで変化したが、1次元系とは異なりその傾きはほぼ $-1/2$ であった。





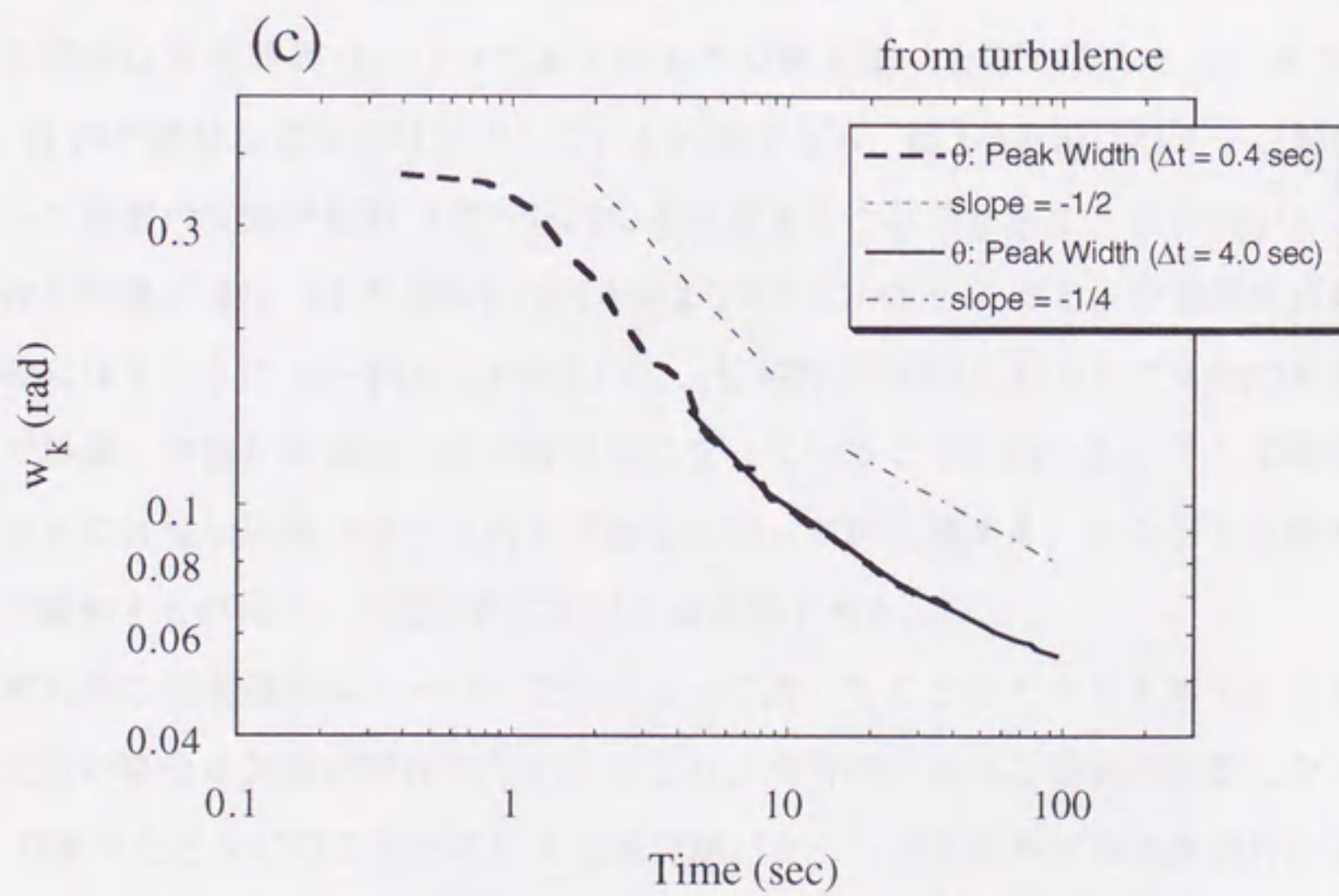
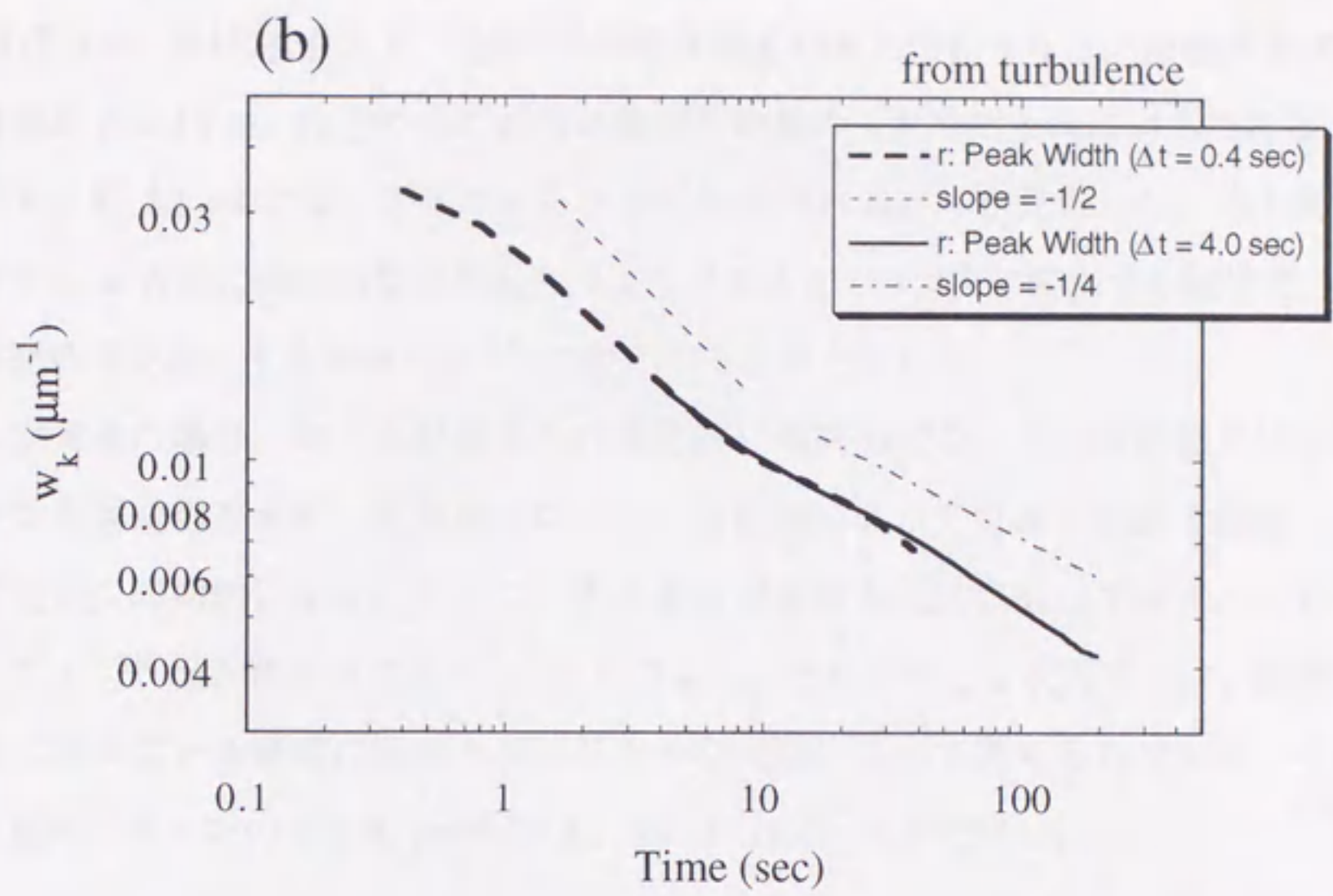


図2-16 2次元パワースペクトルにおけるピーク幅の時間変化. (a); 電場ゼロの初期状態. (b); 乱流の初期状態における  $k_r$  軸方向. (c); 乱流の初期状態における  $k_\theta$  軸方向.

初期状態が乱流の場合の  $k_r$  方向では,  $t = 8.0$  sec 付近に折れ曲がりが見られ, 傾きが  $-1/2$  から  $-1/4$  に変化した. 図2-14の積分強度の図と比較すると, 振幅がほぼ飽和する時刻が  $t = 10$  sec 付近で, この折れ曲がりの起こった時刻とほぼ同じである.  $k_\theta$  方向でも,  $k_r$  方向ほどははっきりではないが同様の折れ曲がりが見られた. 等方的な乱流状態から  $x$  方向に局所的な周期をもつようになるのが  $t^{-1/2}$  で変化する領域で,  $x$  方向の周期性を完全にする領域で  $t^{-1/4}$  で変化すると考えられる.

1次元系の場合, ロールが出そろい局所的に周期的になっている状態では位相は滑らかな空間変動を示す. それからロールの再配列によって位相や波長を調節し, 系全体で完全に周期的になる. そして, その過程が拡散方程式に従っており, それを起源として  $t^{-1/4}$  則が現れることを2.2.1で見た. それに対し2次元系では, 局所的に周期的になっている領域の間はトポロジカルな欠陥によって隔てられている. そのような状態のパターンの2次元 profile  $I(x, y)$  は (2.6) 式と同様に,

$$I(x, y) = R(x, y) \cos[k_0 x + \phi(x, y)] + \text{higher-harmonics} \quad (2.11)$$

と書ける. しかしながら  $\phi(x, y)$  は滑らかには変化しておらず, トポロジカルな欠陥のある場所は位相特異点になっており位相の空間変動にとびが見られる. すなわち  $\phi(x, y)$  の不連続な変化が局在化している状態である. 図2-17(a)はパターン形成過程において数個の欠陥が周期パターン内に埋め込まれた状態を示す. この図から1次元の場合と同様に  $\phi(x, y)$  を抽出した図を図2-17(b)に示す. ただし, 位相特異点の位置が明確になるように  $\sin^2 \phi(x, y)$  を描いた. 位相特異点の(a)において欠陥の存在する場所で黒線と白線が交差し, 位相特異点になっていることがわかる. そして時間の経過とともに欠陥は周期パターン内を運動していつて対消滅する. すなわち位相の空間変化が緩和する過程は, 位相特異点の対消滅過程である.

1次元系の形成過程はフーリエ空間によって調べることができると考えられるが, 2次元系の場合は欠陥が局在化しているため, 実空間における観測が必要となる. §2.1で述べたEHCの2次元系に1次元周期パターンが形成される過渡過程において, トポロジカルな欠陥の運動を観察した研究がある. それ以外にも, 理論的にはトポロジカルな欠陥を (1.6) 式のGP方程式における位相特異点をもつ解とし, トポロジカルな欠陥の運動を議論した研究が行われている<sup>15)</sup>.

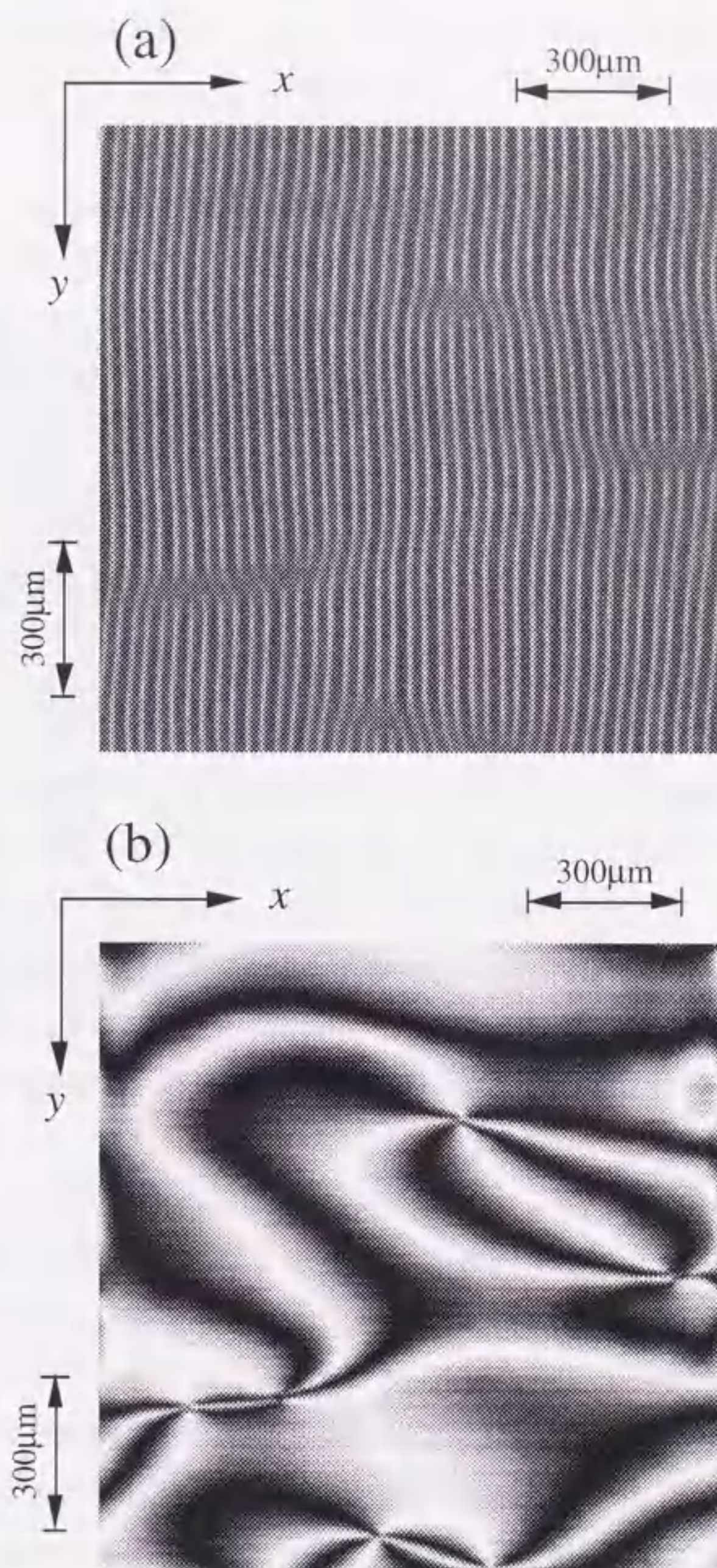


図2-17 Williams domain の中に欠陥が局在化した状態. (a); パターンの2次元 profile  $I(x, y)$ . (b); (a)から抽出した局所的な位相  $\phi(x, y)$  の2次元 profile.

また以下では、本研究の対象とした系が、統計物理学の分野で知られている2次元XYモデルと類似していることを示し、類似性をもとに欠陥の運動を考察する。

2次元XYモデルとは、XY面内で回転が可能なスピンの2次元平面上に配列したモデルである。Time-Dependent Ginzburg-Landau方程式をもとに、 $x$ 軸とスピンとのなす角 $\phi$ が拡散方程式に従うことが示されている。さらに、1対の欠陥の間にはたらく力は、距離に反比例することが導出されている。実際に、長屋らは、XYモデルに対応する液晶系において、1対の欠陥間の距離 $l$ に対して次のような運動方程式を仮定し、

$$G \frac{dl}{dt} = -\frac{2}{l}, \quad (2.12)$$

実験結果がこの方程式の解、

$$l^2 \propto (t_0 - t) \quad (2.13)$$

に従うことを見出している<sup>16)</sup>。ただし $G$ は、フランクの弾性定数などを含む定数、 $t_0$ は定数である。本研究では、1次元系において、(2.6)で定義された局所的な位相 $\phi$ が拡散方程式を満たしていることがわかっている。したがって、2次元系でも $\phi$ が拡散方程式を満たしていると考えられる。上述したように、2次元XYモデルでは、 $\phi$ が拡散方程式に従うならば欠陥対間の距離 $l$ が(2.13)に従うので、本研究の実験データに対してもこれを調べてみる。

図2-18は、周期構造中に埋め込まれた欠陥対を示す。欠陥では、ロール2本が対になって入り込んでいる（または抜けている）。これは結晶のディスロケーションに対応する。位相 $\phi$ の変化に着目すれば、このようなトポロジカルな欠陥は位相特異点として現れ、その周りを反時計回りに1周すると、位相が $+4\pi$ 変化するものと $-4\pi$ 変化するものに分けられる。そして $+4\pi$ の欠陥と $-4\pi$ の欠陥が対になって消滅する。このような欠陥対の間の距離を $l(t)$ としたとき、本研究の2次元系のパターン形成過程における $l(t)$ の2乗の時間変化を図2-19に示す。240 sec 辺りから(2.13)の関係が見られる。(2.12)は完全に孤立した欠陥の1対に対して成り立つが、本研究の場合は、距離を測定した欠陥対以外にも近くに欠陥対が存在し、その影響を受けているものと考えられる。240 sec 辺りでその欠陥対は対消滅し、その後は測定対象の欠陥対のみが残り、(2.12)に従って対消滅したものと考えられる。

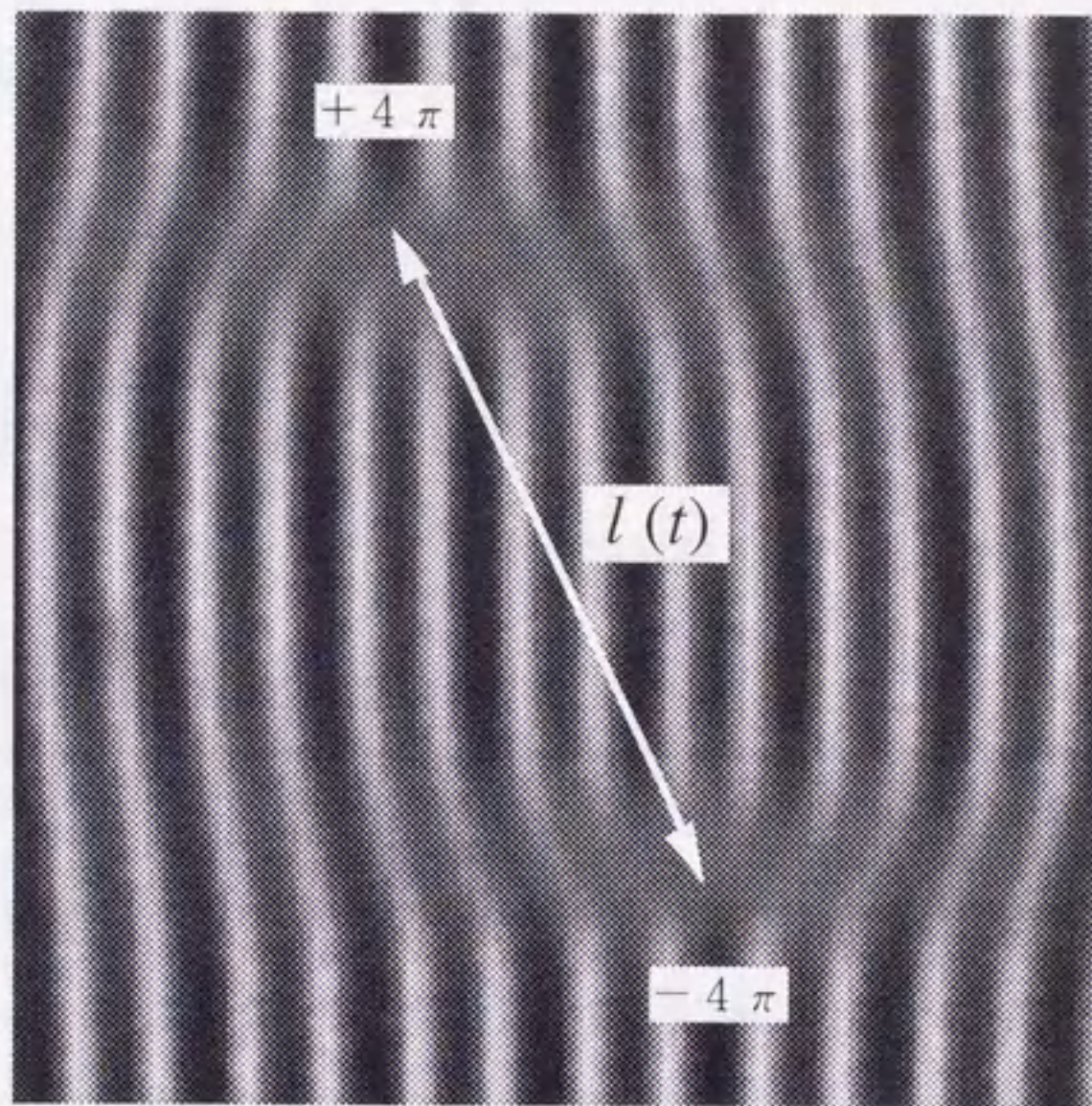


図2-18 トポロジカルな欠陥対.

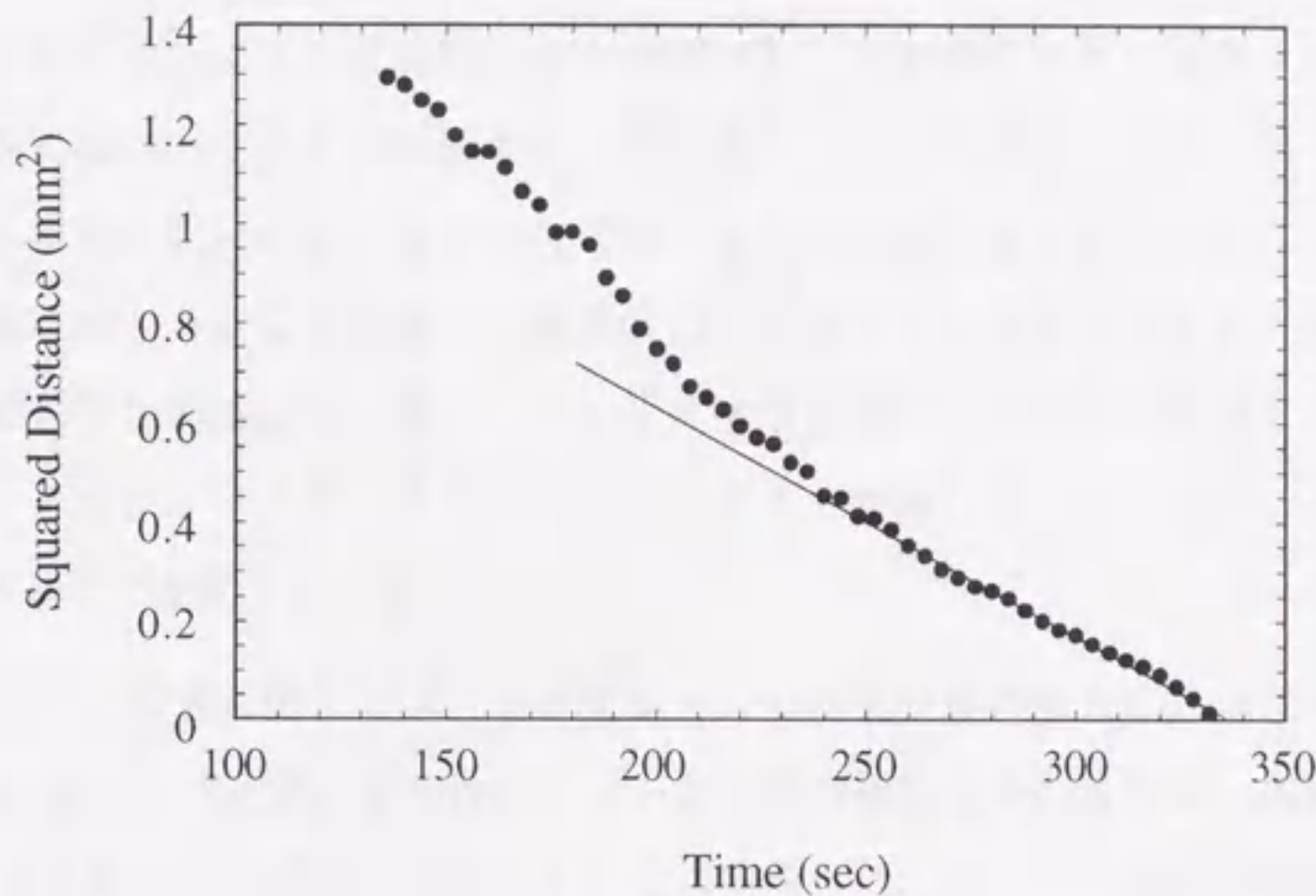


図2-19 1対の欠陥間の距離の2乗の時間変化.

さらに、平衡状態で一様な分子配向を示す液晶系を強制的に非平衡状態にし、多数の欠陥を生成させ、そこから平衡状態へ緩和していく過程で欠陥の対消滅が起こるような系において、空間相関関数を用いた議論が長屋らによって行われている<sup>17,18</sup>。2次元分子配向場の空間相関関数から相関距離が求められるが、多数の欠陥が対消滅していく過程において相関距離の時間変化  $\xi(t)$  が、 $\xi(t) \propto t^{1/2}$  という関係を満たすことが明らかにされている<sup>17</sup>。フーリエ空間におけるピーク幅は [長さ]<sup>-1</sup> という次元をもつことから、電場ゼロの初期条件の場合の図2-16(a) において見出されたスポットの幅  $w_k$  が  $w_k \propto t^{1/2}$  に従うこととの関連に注目される。しかしながら、初期条件が乱流の場合には  $t^{1/4}$  に従う時間領域もあり、現段階では2次元 XY モデルとのアナロジーは完全ではない。また、2.3.1で述べたように、1次元系では位相の拡散過程から  $w_k \propto t^{1/4}$  が導かれている。位相拡散過程での  $t$  のべき指数は、位相の初期状態に依存すると考えられるため、振幅成長領域から位相の拡散過程に移った時点で位相の状態がどのようになっているか、さらに詳細に調べる必要がある。しかしながら、非平衡状態から平衡状態へ緩和していく過程と、非平衡開放系で散逸構造が形成される過程に類似点が見出されることは、非常に興味深い。

## § 2.4 まとめ

EHCにおいて1次元周期をもつ対流パターンが形成される過程を、1次元系と2次元系においてそれぞれ観測した。初期条件として2種類の状態、第1は電場ゼロすなわち流れのない状態、第2は高電場すなわち乱流状態とした。これらの初期状態から、電圧の大きさを対流発生の臨界値のわずかに上にジャンプさせた後の周期パターン形成過程を観測した。特に、フーリエ空間における周期性の発達を、周期を表わすパワースペクトルのピークの時間変化によって観測した。その結果、まず1次元系では以下のことが明らかになった。

- 1) 振幅の成長に関しては、まず電場ゼロの初期条件の場合は、ほぼゼロから速やかに成長し一定値に落ち着いた。一方乱流の初期条件の場合は、初めから振幅は充分大きく、わずかに成長してすぐに飽和した。ただし、振幅が飽和するのに要する時間は初期条件によらずほぼ等しかった。
- 2) 周期性を表すスペクトルのピーク幅が、 $t^{-1/4}$  則に従って鋭くなっていった。 $t^{-1/4}$  則は、Schober らによって位相拡散から導かれたので、実験データから局所的な位相を抽出しその時間変化を観察した。その結果を拡散方程式と比較し、位相の空間変動が拡散過程によって緩和し、完全な周期パターンへ至ることがわかった。

次に2次元系では以下のことが明らかになった。

- 4) 振幅の成長については、どちらの初期条件の場合も1次元系の場合と同様のふるまいを示した。
- 5) 電場ゼロの初期状態の場合のスペクトル・パターンについては、楕円状のスポットが  $x$  方向、 $y$  方向ではほぼ同じように収縮していき、収縮の仕方は  $t^{-1/2}$  則に従っていた。
- 6) 乱流の初期状態の場合は、円周上に広がったスペクトル・パターンが円周上を収縮していき、同時に動径方向にも収縮した。収縮の仕方は、振幅がほぼ飽和する時刻で  $t^{-1/2}$  則から  $t^{-1/4}$  則へ変化した。

1次元系、2次元系、初期状態に関わらず、比較的早い段階で振幅は飽和し、パターンは局所的に周期的になるが、その状態は位相の空間変動として表現できる。1次元系の場合は位相の滑らかな変化として表現できるが、一方2次元系では、欠陥が局

在化した位相のとびとして現れ、その後は欠陥の運動と対消滅によって完全な周期パターンが形成される。2次元 XY モデルとのアナロジーをもとに考察を行った結果、欠陥の運動に関して次のことが明らかになった。

- 7) 欠陥対の距離  $l$  が、 $l^2 \propto (t - t_0)$  に従って小さくなっていき、最終的に対消滅することがわかった。液晶の2次元分子配向場に関する長屋らの研究との比較から、欠陥の対消滅過程からスペクトル・パターンの時間変化に関する  $t^{-1/2}$  則が導かれることが示唆された。



## 第3章 自由境界を持つ対流系におけるパターン形成

### § 3.1 はじめに

第2章で述べたように、対流系におけるパターン形成は、系のアスペクト比<sup>1-3)</sup>や側面の境界条件に強く依存すると考えられる。周期パターンの波数は、EHCの場合であれば電圧の大きさや周波数といったパラメータに依存して変化する<sup>4)</sup>。アスペクト比が無限大の系であれば波数は連続的に変わり得るが、アスペクト比が有限の系では、境界条件によって取り得る波数の値は決まってしまう。したがって波数は離散的になり、アスペクト比が小さいほど離散化の幅は大きくなる。外部パラメータをゼロからゆっくり上げていってしきい値を越えると **primary instability** が生じてロール状の周期構造が現れる。初期に現れる周期構造は横方向 ( $y$  方向) の系のアスペクト比を知らないので、波数は系の厚さにのみに依存して決まるであろう。波数は理論的には線形安定性理論<sup>5)</sup>によって求めることができるが、その理論でも  $y$  方向の境界条件は考慮されていない。しかし周期構造が系全体に拡がってくると、系の大きさと整合しない場合もあり得る。その場合は波数が変化して最終的には別の波数をもった周期構造が安定になる<sup>1,2)</sup>。また小アスペクト比系のRB対流で、側壁と流体の熱拡散係数の違いが **primary instability** の最も強いトリガーとなり、側面の境界条件がパターン形成に影響を及ぼすことも知られている<sup>6-8)</sup>。

この章では、まず初めにアスペクト比が小さい系における周期パターン (**Williams domain**) の形成過程を調べた結果を示す。また、側面が自由境界条件と剛体境界条件の場合のパターン形成過程を比較した。さらに、自由境界条件をもつ2つの同一の対流系を結合した「結合対流系」を初めて開発し、そこでのパターン形成について調べた。以下ではそれらの結果について述べる。

§ 1.1で述べたように、われわれのまわりに見られる日常的な自然現象としての対流現象を、実験室内で系のおかれた条件を整えて観察することによって本質的な性質

を明らかにしてきた。しかしながら、本質を見失わずにさらに一般的な対流現象の性質を明らかにする必要もあり、本研究の自由境界や結合対流系はそのひとつとして重要であると考えられる。

## § 3.2 実験

### 3.2.1 Free Lateral Boundary Cell

§ 1.2で述べたように、液晶のEHCでは、セルの厚さが数 $10\mu\text{m}$ 程度なので、小アスペクト比系を作るためには数 $10\sim$ 数 $100\mu\text{m}$ の大きさの容器に液晶を封入し配向させなければならない。しかしながら、側壁の不完全性を対流系に影響を与えない程度まで抑えてこの大きさのセルを作ることは大変困難である。本研究では、ITOの帯状パターン電極を用いてセル内の液晶の一部にだけ電場が印加されるようにした「Free Lateral Boundary Cell (FLBC)」を開発して、小アスペクト比の系を実現した。

まずパターン電極を、「photo lithography」とよばれる技術を使ってガラス板の上に加工した。これは、光に感応する物質を利用して微細なデバイスや回路のパターンを複製・量産する技術で、半導体集積回路や液晶ディスプレイのデバイスなどを作るのに用いられている。ガラスの表面に感光性を有するフォトレジストを塗布し、電極のパターンが描かれたマスクを通して光を照射する。ガラスを現像液に浸すと、光の当たらなかった部分だけが現像液に溶けて、パターン電極の形状でくり抜かれた形のフォトレジスト膜がガラスの表面に残る。残ったフォトレジスト膜は、ITOを塗布する際のマスクになる。あらかじめ電極のパターンを拡大したマスクを作り、そのマスクを通った光を絞って照射すれば、微細なパターン電極を加工することができる。

図3-1にFLBCの概略図を示す。大まかには図2-1, 2と同様に $1\times 1\text{cm}^2$ 程度の大きさのガラスの間に液晶(ZLI-1831)をはさむ構造になっているが、FLBCでは帯状の電極が上述の photo lithography によってガラスの表面に塗布されている。x方向のアスペクト比の異なる2種類のセルを作成し、大きい方をI型、小さい方をII型とした。I型では、一方のガラスには幅 $200\mu\text{m}$ の電極がy方向に付けられ、他方のガ

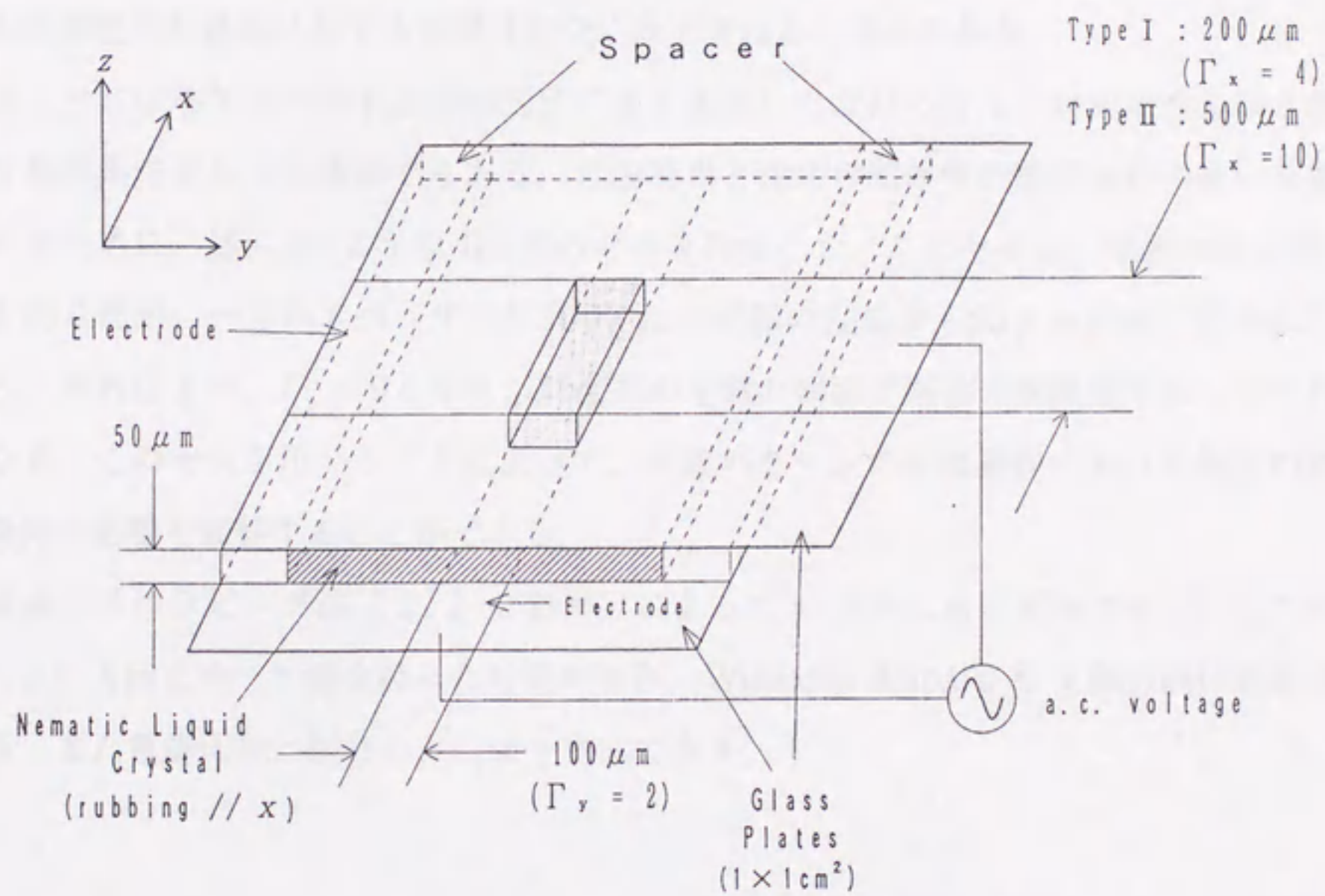


図3-1 Free Lateral Boundary Cell (I型, II型). 上の帯状電極と下の帯状電極は互いに交差しているため、その交差した部分にはさまれた液晶にのみ電場は印加される。

ラスには $100\mu\text{m}$ の電極が $x$ 方向に付けられており、電極の重なった部分 ( $L_x = 200\mu\text{m}$ ,  $L_y = 100\mu\text{m}$ ,  $L_z = 50\mu\text{m}$ ) の液晶にのみ電場が印加される。この部分のアスペクト比は、 $x$ 方向は $\Gamma_x = 4$ 、 $y$ 方向は $\Gamma_y = 2$ となる。II型では、一方のガラスには幅 $500\mu\text{m}$ の電極が $y$ 方向に付けられ、他方のガラスには $100\mu\text{m}$ の電極が $x$ 方向に付けられており、電極の重なった部分 ( $L_x = 500\mu\text{m}$ ,  $L_y = 100\mu\text{m}$ ,  $L_z = 50\mu\text{m}$ ) のアスペクト比は、 $x$ 方向は $\Gamma_x = 10$ 、 $y$ 方向は $\Gamma_y = 2$ となる。I型とII型を比較することによって、アスペクト比の違いがパターン形成過程に及ぼす影響を観察することができる。どちらも液晶の封入されている部分は $1 \times 1\text{cm}^2$ 程度の大きさなので、セルの側壁の対流系に対する影響は完全に除去されると考えられる。

FLBCは小アスペクト比系のEHC系を実現しただけでなく、自由境界という特殊な境界条件をもつ対流系でもある。自由境界と通常の剛体壁の境界条件の違いを観察するために、図3-2のようなIII型のセルを作成した。このセルは、電極の幅はII型と同じだが、一方のスペーサーが $500\mu\text{m}$ の電極の左端から $50\mu\text{m}$ 内側に置かれている。それにより、 $\Gamma_x = 9$ となり、対流系の左側の側面が剛体の境界条件をもつことになる。このセルを用いることによって、対流パターンの形成過程における側面の境界条件の影響を観察することができる。

液晶分子はラビング法 (2.2.2参照) によって $x$ 方向に水平配向させた。したがって、 $y$ 方向にロール軸を持った対流が起き、Williams domainも $y$ 軸方向に形成される。また電場印加と観察の方向は $z$ 方向である。

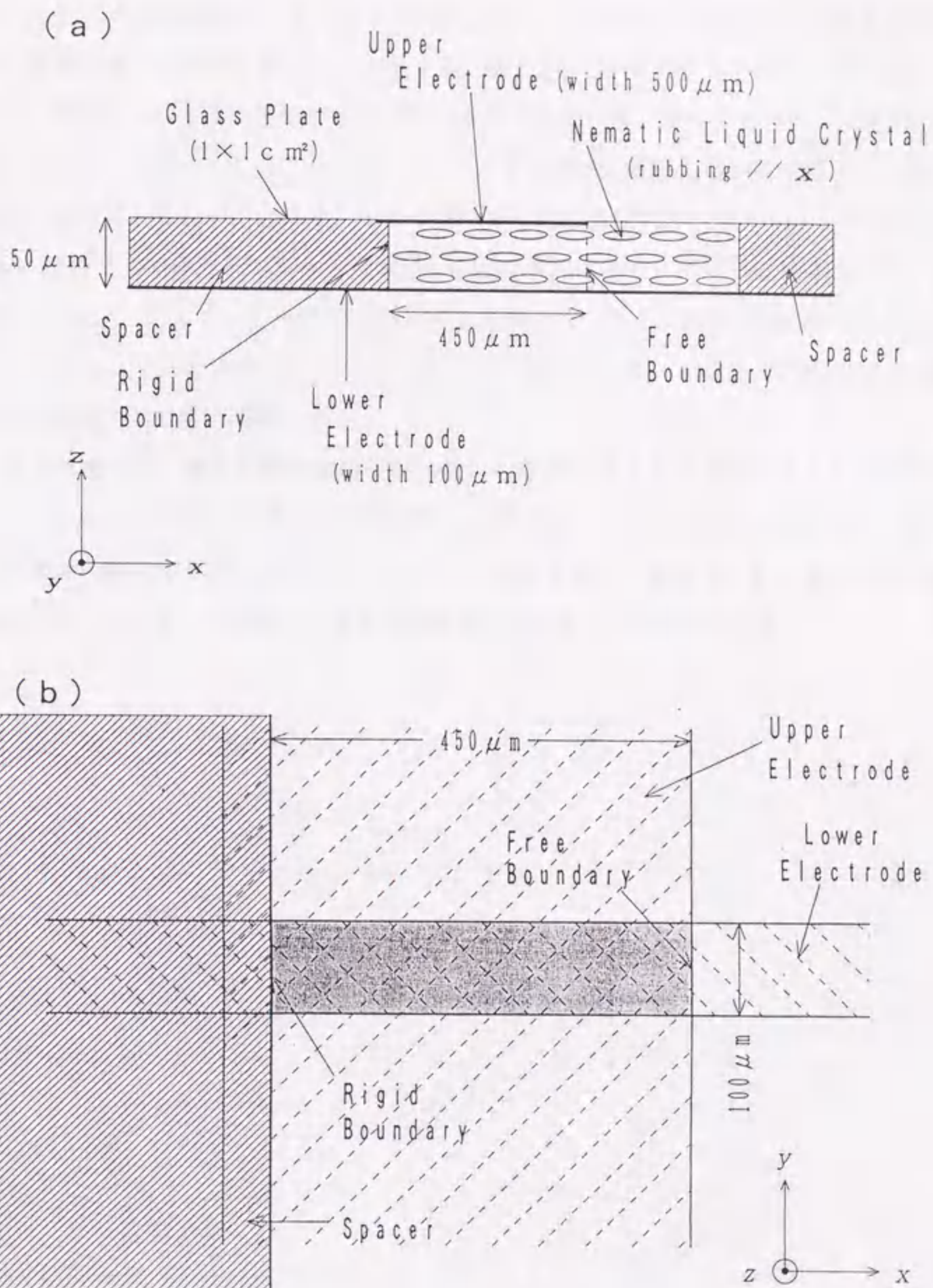


図3-2 III型セル. スペースが $500 \mu\text{m}$ の帯状電極の左端付近に電極と平行に置かれ, 対流系の左側の側面が剛体境界になっている.

### 3.2.2 結合対流系

F L B Cの帯状電極を2本にすることによって、2つの小アスペクト比系を自由境界と液晶を介して結合させることができる。図3-3にIV型のセルを示す。上のガラスには、幅 $200\mu\text{m}$ の帯状電極が2本平行に塗布されている。それによって、I型と同様のアスペクト比 $\Gamma_x = 4$ ,  $\Gamma_y = 2$ の小アスペクト比の対流系が $x$ 方向に結合する。図3-3(b)における左と右の対流系を、それぞれサブシステム“L”, “R”とよぶ。図3-4のV型のセルでは、下のガラスに幅 $100\mu\text{m}$ の帯状電極が2本平行に塗布されている。それによって $\Gamma_x = 4$ ,  $\Gamma_y = 2$ の対流系が $y$ 方向に結合する。図3-4(b)における上と下の対流系を、それぞれサブシステム“U”, “W”とよぶ。液晶分子の配向方向や観察の方向はF L B Cと同様である。

R B対流では、流体を剛体容器の中に封入し物質の出入りがないようにして実験を行う。しかしながら、現実には気象現象などのように、大きな系の一部分のみで非線形非平衡の度合がしきい値以上になっている場合もあるであろう。F L B Cや結合対流系では、そのような現象に対する実験的知見を得ることが期待できる。

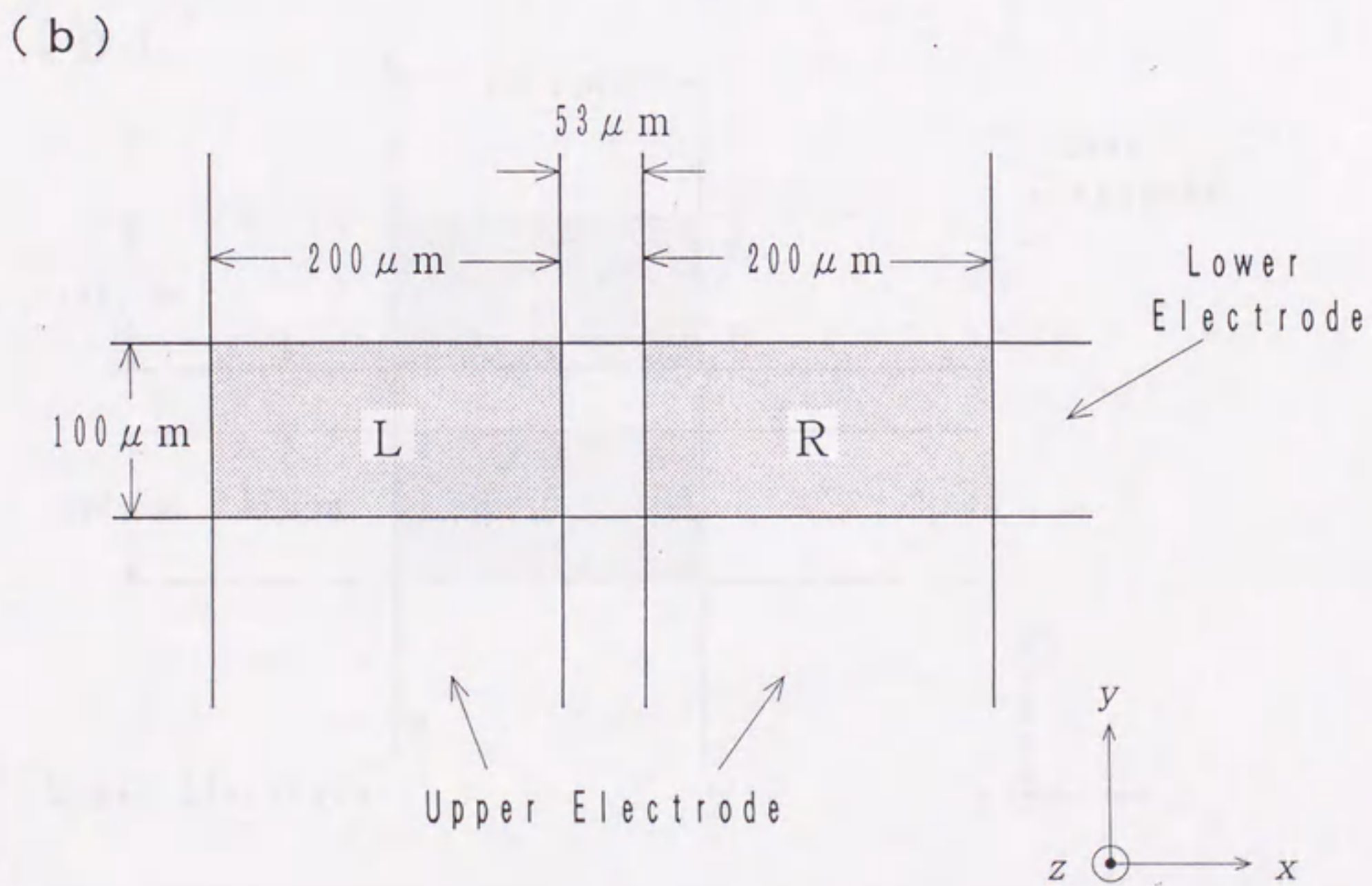
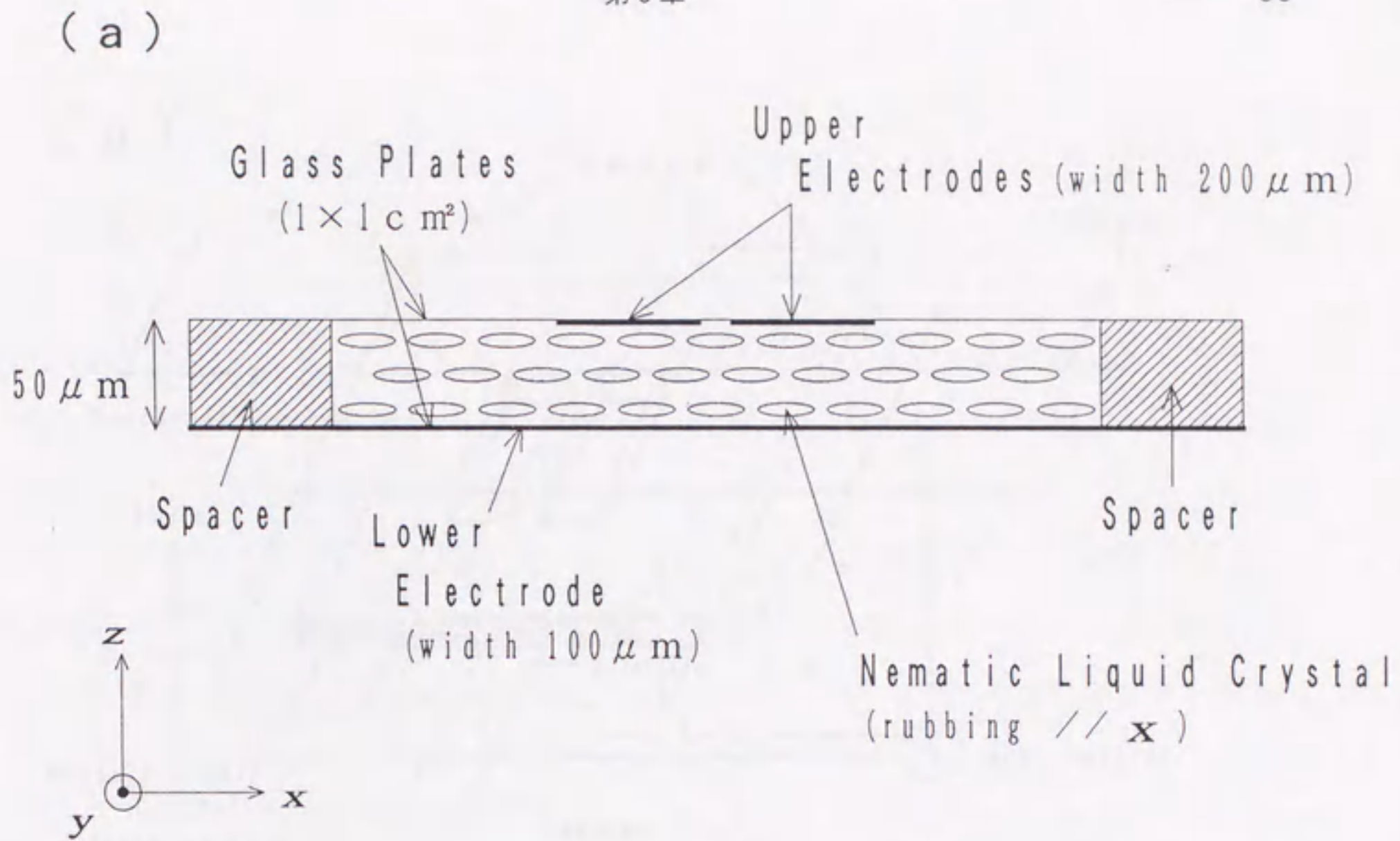


図3-3 IV型セル. 上のガラスに幅 $200 \mu\text{m}$ の帯状電極が2本平行に $53 \mu\text{m}$ の間隔で塗布されている. "L"と"R"は左と右のサブシステムを表わす.

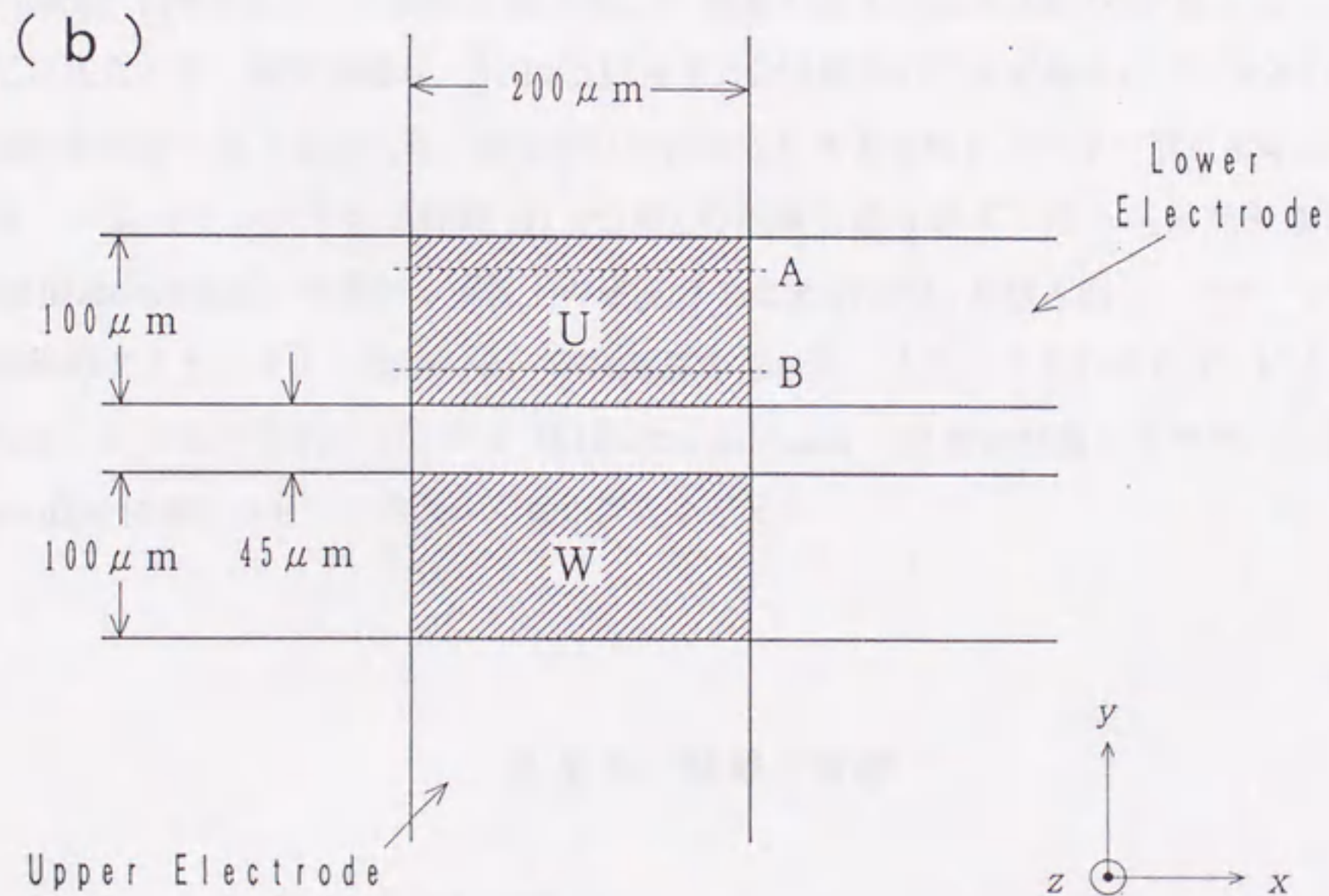
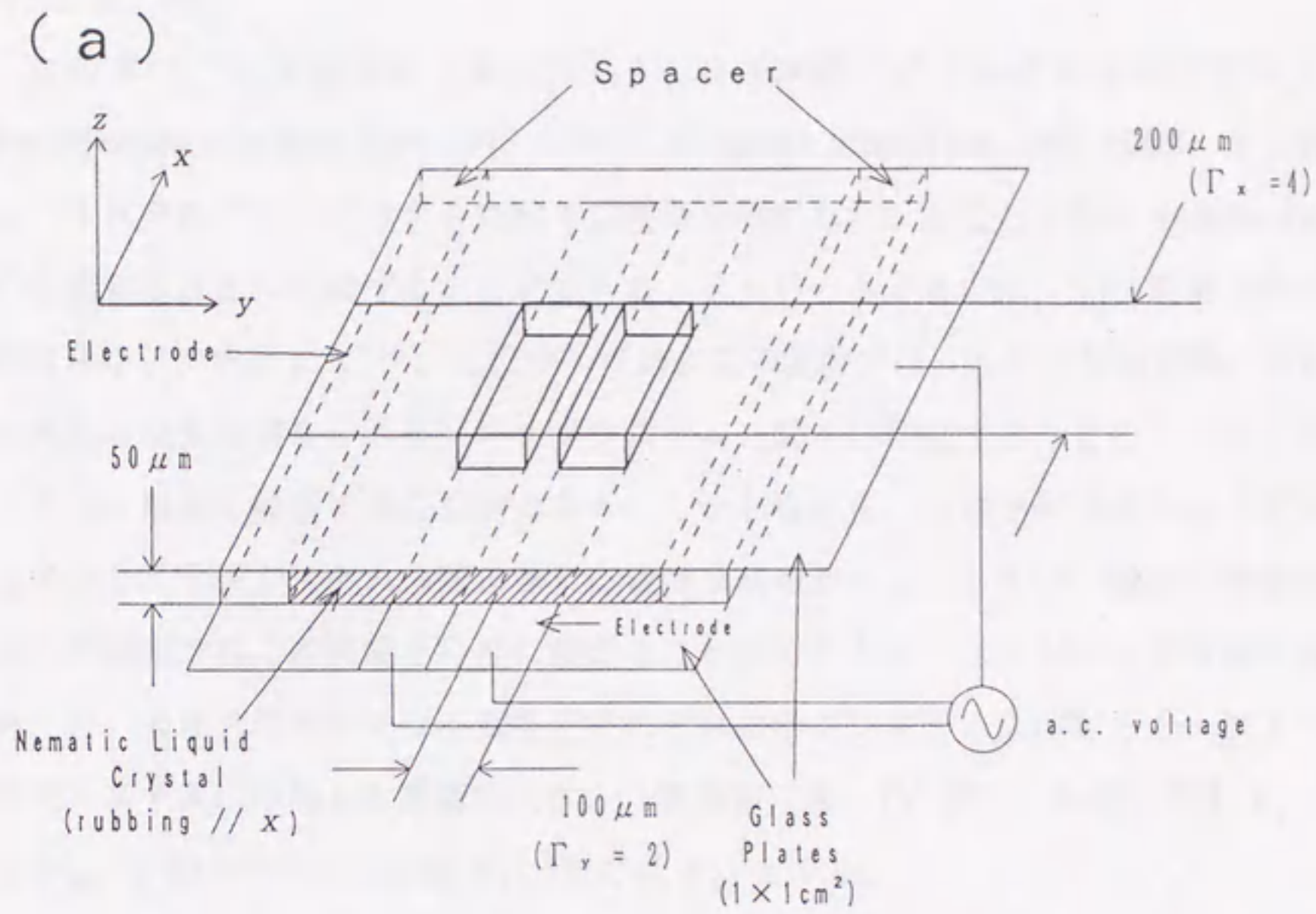


図3-4 V型セル. 下のガラスに幅 $100\mu\text{m}$ の帯状電極が2本平行に $45\mu\text{m}$ の間隔で塗布されている. "U"と"W"は上と下のサブシステムを表わす.



### 3.2.3 測定

この章での実験系は第2章の図2-3とほぼ同様だが、結合対流系の実験では、multifunction synthesizer (NF 1940) と power amplifier (NF 4005) を2組用意し、それぞれのサブシステムに別々に電場を印加した。ただし2台の synthesizer 間の位相差は自由に制御することができる。EHCのふるまいは、印加電場の大きさや周波数などに依存する<sup>9-13)</sup>。したがって結合系の実験では、大きさや周波数、位相などの異なる交流電場をそれぞれのサブシステムに別々に印加することによって、多様なパターン形成を観察することができる。しかしながら、位相や周波数の違う電場を印加すると、サブシステムの間非常に複雑な現象が生じてしまい、現在の画像解析を用いた観測ではこの現象を的確に捉えることができない。したがって周波数や位相は同一で、大きさのみの異なる電場をそれぞれのサブシステムに印加した。以下では、サブシステムに印加した電場の大きさ（実効値）を、IV型のセルのLでは  $V_L$ 、Rでは  $V_R$ 、V型のセルのUでは  $V_U$ 、Wでは  $V_W$  とする。

測定中の温度はホット・ステージによって一定に保たれた。ただしI~IV型セルはMettler FP80によって30°Cに保たれ、V型セルはLinkam TH-600PRによって50°Cに保たれた。顕微鏡像は、512×512画素、256階調の2次元濃淡パターンとして画像解析装置に取り込まれた。電圧ゼロの状態からある電圧にステップ状に変化させた後、一定のサンプリング時間  $\Delta t$  で24枚の画像を取り込み、取り込んだ画像からWilliams domainを横切る直線上の濃淡の1次元profileを抜き出し、パターン形成過程のダイナミクスを観察した。印加電圧の周波数と大きさをそれぞれ  $f$ 、 $V$  とする。また、この章の実験においてもWilliams domainの虚像を観察したので、1次元profileに現れるピークはロール軸の位置を示す。

## § 3.3 結果と考察

### 3.3.1 小アスペクト比の対流系

図3-5にI型セルにおけるWilliams domainの発展過程を示す。1次元profileを時間の経過とともに下から上へ並べた。横軸は上述のWilliams domainの中心を横切

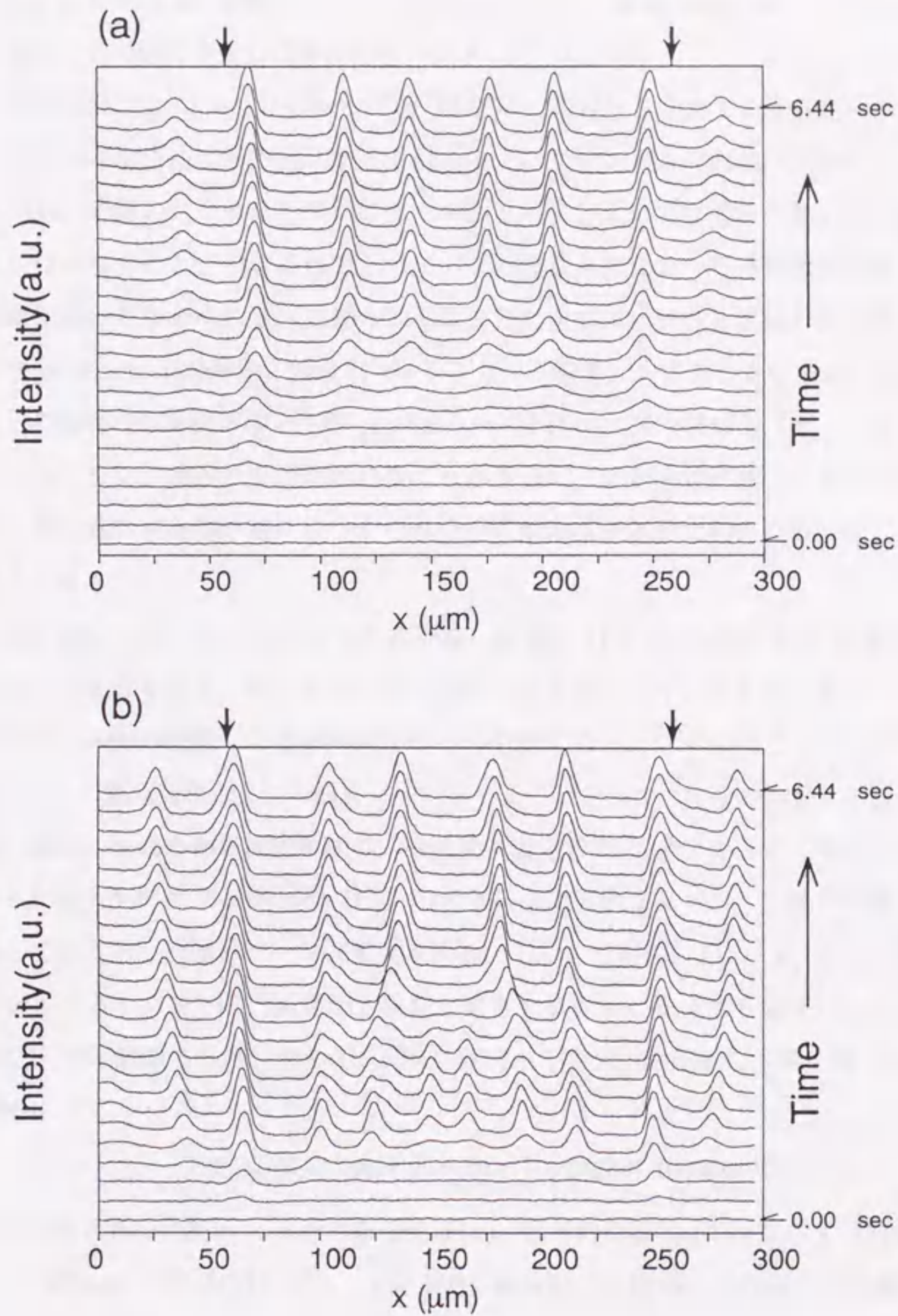


図3-5 I型セルにおける Williams domain の1次元 profile の時間発展. サンプルリング時間  $\Delta t = 0.28$  sec (測定時間6.44 sec). 矢印は側面の自由境界の位置を示す. (a) ;  $f = 1$  kHz,  $V = 10.9 V_{\text{rms}}$  の場合. (b) ;  $f = 1.2$  kHz,  $V = 15.0 V_{\text{rms}}$  の場合.

る直線状の位置  $x$ ，縦軸はパターンの濃淡を表わす．時刻  $t = 0 \text{ sec}$  で，セルに電圧を印加すると同時に1枚目の画像をサンプリングした．

図3-5(a)では， $f = 1.0 \text{ kHz}$ ， $V = 10.9 \text{ V}_{\text{rms}}$ の電圧を印加した場合を示す．初めロールは両端の自由境界の辺りから出現する．パターンが系の内側へ向かって成長するにつれ，両端のロールはわずかに外へずれる．FLBCでは電極の無い部分にもロールがはみ出すことができるので，パターンの波数選択において剛体境界の系よりも自由度が高いと考えられる．上述のようにRB対流では，側壁と流体の熱拡散係数の違いが **primary instability** の最も強いトリガーとなる．一方FLBCでは，電極の縁付近での電場の空間的不均一性が **primary instability** の最も強いトリガーとなると考えられる．また，両端の自由境界の外にも小さなピークがそれぞれ1つ現れるが，これは，系の外の液晶が対流に引きずられ分子の配向に歪みが生じたために生じたものと考えられる．

図3-5(b)では，(a)の場合よりも高周波，高電圧 ( $f = 1.2 \text{ kHz}$ ， $V = 15.0 \text{ V}_{\text{rms}}$ ) を印加した場合を示す．初め8ロールが形成されるが，すぐに不安定になり，中央の2つのロールが対消滅して最終的に6ロール状態になる．このふるまいは，**Williams domain** の形成過程が2つの段階に分けられることを示す．すなわち第1の線形成長段階，第2の波数の修正段階を経て，最終的に安定になる<sup>1,2)</sup>．第2章でも述べたように，ロール軸方向のアスペクト比 ( $\Gamma_y$ ) の大きい2次元的な系では，欠陥の生成と運動を通して定常的な周期パターンが形成される．しかしながら， $\Gamma_x$  と  $\Gamma_y$  が充分小さいI型セルのような系では，両端から成長してきたロールの衝突する場所において位相のとび<sup>14,15)</sup>が観測された．図3-6に，図3-5(b)の1次元profileを，第2章(2.3)式と同様に

$$I(x) = R(x) \cos[k_0 x + \phi(x)] + \text{higher-harmonics} \quad (3.1)$$

と書いたときの， $I(x)$  と局所的な位相  $\phi(x)$ ，局所的な振幅  $R(x)$  を示す(補記A)． $t = 1.40 \text{ sec}$  (図3-6(a))では， $x = 160 \mu\text{m}$ 付近で位相のとびと振幅の消滅が見られる<sup>14,15)</sup>．1次元大アスペクト比系では，パターン形成の過渡過程における完全な周期状態からのずれは，図2-9(a)に見られるように  $\phi(x)$  の滑らかな空間変動として現れたが，小アスペクト比系ではこのように局在化した位相のとびとして現れる．時間の経過とともにこの位相のとびは緩和していき，最終的に  $t = 6.44 \text{ sec}$  では  $\phi(x)$  はほとんど一定になる．

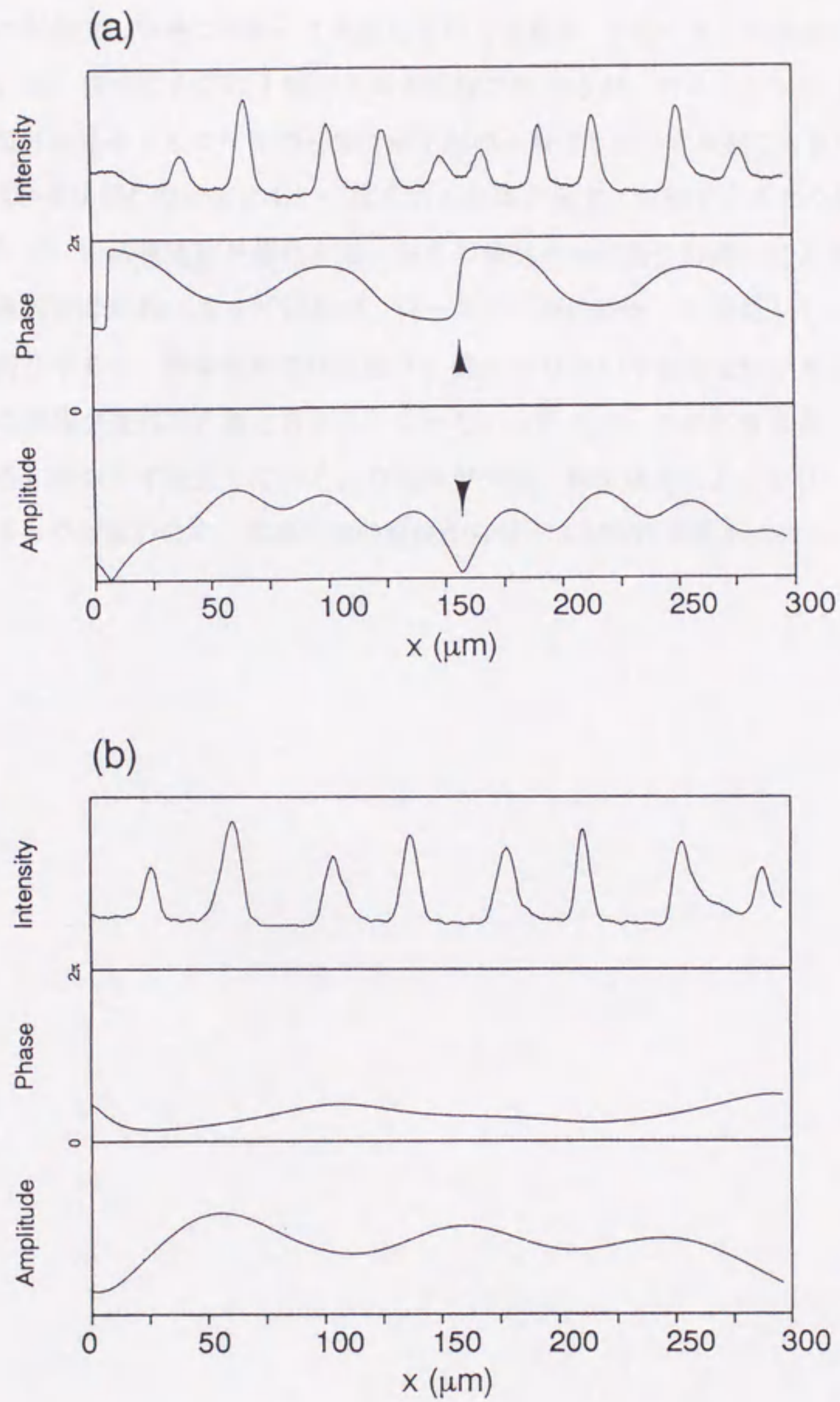


図3-6 図3-5(b)における濃淡パターンの1次元 profile  $I(x)$  と局所的な位相  $\phi(x)$ , 局所的な振幅  $R(x)$ . (a) ;  $t = 1.40 \text{ sec}$ ,  $k_0 = 0.206 \mu \text{ m}^{-1}$ . 矢印は位相のとびと振幅の消滅の位置を示す. (b) ;  $t = 6.44 \text{ sec}$ ,  $k_0 = 0.165 \mu \text{ m}^{-1}$ .

図3-7はII型のセルにおけるWilliams domainの発展過程を示す。系の両端からロールが発生し中央に向かって成長していく過程が、I型のセルの場合よりもはっきりしている。位相のとびはI型のセルと同様に生じるが、アスペクト比 $\Gamma_x$ が大きいので、高電圧の場合でもロールの不整合がI型のセルほどはっきり起こらない。

図3-8はIII型セルにおいて得られた結果を示す。矢印で示された位置( $x = 100\mu\text{m}$ 付近)に剛体境界が存在する。左右の側壁の境界条件の違いによってパターンの形成過程が非対称になっているが、ロールが中央に向かって成長していく速度はほとんど同じである。剛体境界では流速の $z$ 成分が0という境界条件があるので、対流ロールの出現が遅れると考えられる。しかしいったんロールが出現すると、その後は境界条件に関わらず成長していく。自由境界では、剛体境界のようなロールの出現を抑制するものが無いので、電場印加の直後からロールが現れ成長を始める。

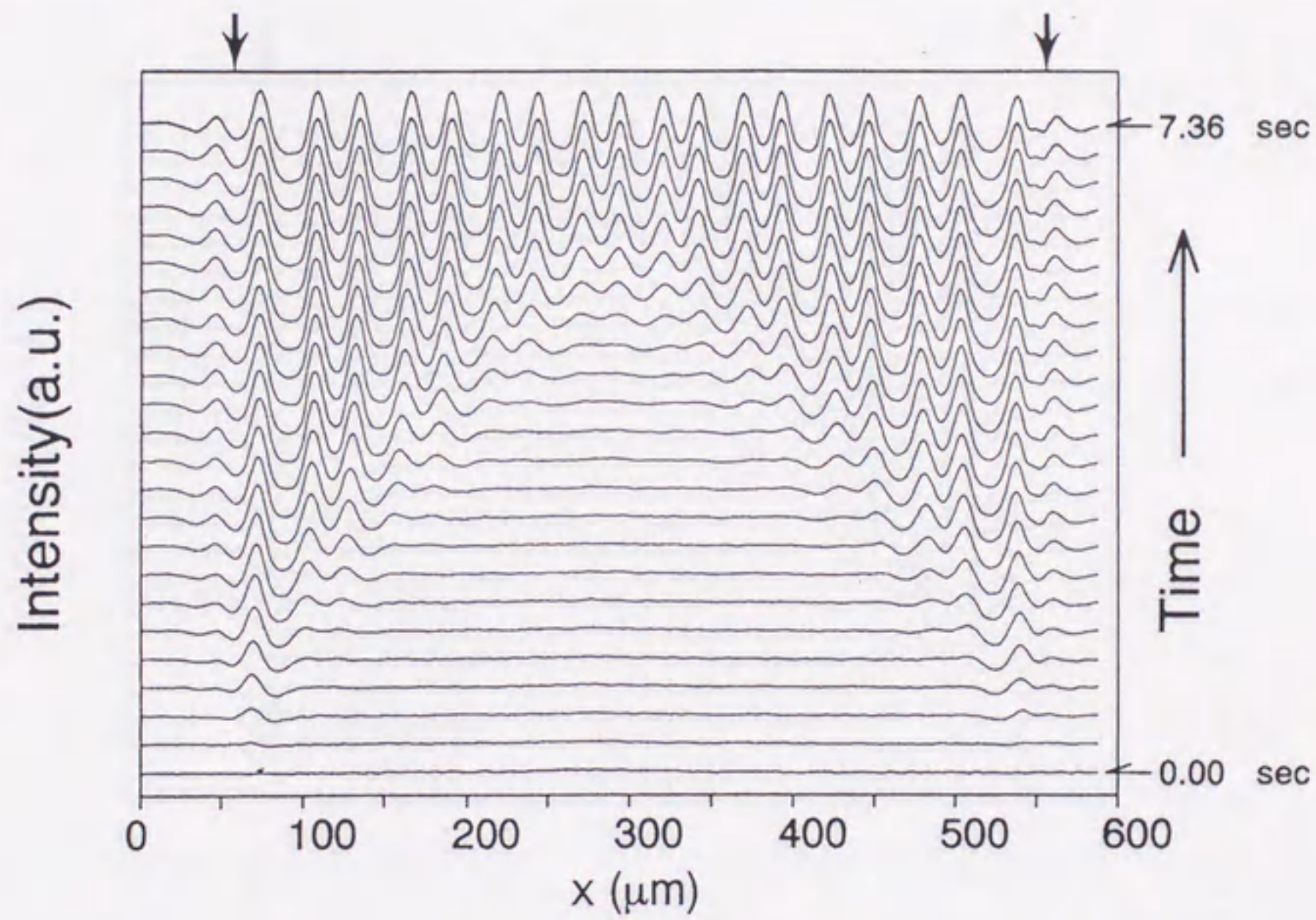


図3-7 II型セルにおける Williams domain の1次元 profile の時間発展. 印加電圧は,  $f = 1 \text{ kHz}$ ,  $V = 11.5 \text{ V}_{\text{rms}}$ , サンプルング時間  $\Delta t = 0.32 \text{ sec}$  (測定時間  $7.36 \text{ sec}$ ). 矢印は側面の自由境界の位置を示す.

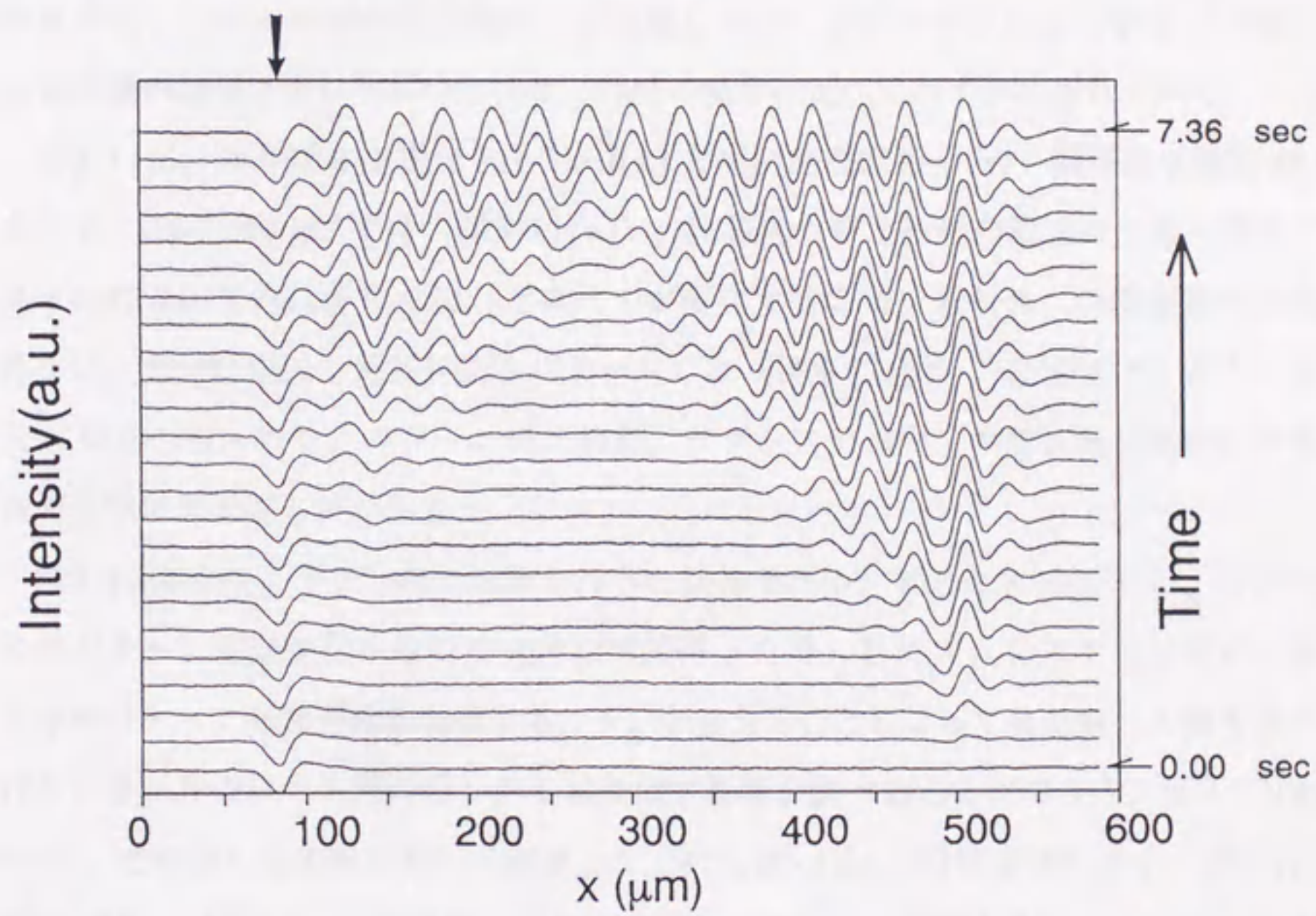


図3-8 III型セルにおける Williams domain の1次元 profile の時間発展. 印加電圧は,  $f = 1 \text{ kHz}$ ,  $V = 11.5 \text{ V}_{\text{rms}}$ , サンプルング時間  $\Delta t = 0.32 \text{ sec}$  (測定時間  $7.36 \text{ sec}$ ). 矢印は側面の剛体境界の位置を示す.

### 3.3.2 x 方向に結合した対流系

図3-9はIV型のセルにおけるWilliams domainである。それぞれのサブシステムに6本の明線すなわち6個のロールがあり、サブシステム間の領域に2本の明線すなわち2個のロールがある。電圧の大きさや周波数を変えることによって、各々のサブシステムに4個、6個、8個、10個のロールをつくることができるが、いずれの場合も中間領域には2個のロールが形成される。IV型のセルにおけるWilliams domainの形成過程を図3-10に示す。各々のサブシステムで、I型やII型の場合と同様に両端から出現したロールが中央に向かって成長していくが、サブシステムが互いに接している内側の境界でのロールの出現は、外側の境界に比べてわずかに遅れている。

図3-11に、図3-10の1次元profile  $I(x)$  と局所的な位相  $\phi(x)$ 、局所的な振幅  $R(x)$  を示す。 $t = 2.88 \text{ sec}$  では(図3-11(a))、位相のとびと振幅の消滅は、各々のサブシステムにおいて両端から出現したロールが衝突する場所に見られ、中間領域では見られない。十分に発達した最終的なパターンでは(図3-11(b))、位相はほとんど一定で  $x$  に依存しなくなり、パターンの周期が、サブシステム内、中間領域に関わらず系全体で一様になることがわかる。

図3-12は次のような手順の実験を行った結果である。初めにRにのみ  $V_R$  を印加し、Rのパターンが安定化するのに十分な時間待った後、Lに  $V_L$  をステップ状に印加し、Lでのパターン形成過程を観察する。 $V_R$  を変えることによってRのロール数を変えられるので、Rのロール数の違いがLに及ぼす影響を調べることができる。図3-12(a)と(b)に、そのような実験において観測した1次元profileの時間変化を示す。図3-12(a)では、 $V_R = 11.1 V_{\text{rms}}$  を印加してRには初めに6ロール状態を作った。(b)では、 $V_R$  を  $12.0 V_{\text{rms}}$  とし、Rには初めに8ロール状態を作った。どちらも、待ち時間を  $t_w = 5 \text{ min}$  としそれから  $V_L = 10.9 V_{\text{rms}}$  をステップ状に印加し、Lでのパターン形成過程を観察した。(c)は、(a)と(b)で印(▲, ■, ●, ×)を付けたピークの時間発展を示す。Lには同じ電圧が印加されているので外側のピーク(▲, ●)はほとんど同じ速さで成長するが、(b)における内側のピーク(×)は、(c)における内側のピーク(■)より遅れて現れる。FLBCでは、ロールは電極のない部分にもはみ出すことができるため、8ロールパターンより6ロールパターンの方が幅が広くなり、サブシステム間の中間領域にもロールがはみ出している。(b)では、Lの右端のロールの出現が、中間領域にはみ出したRの左端のロールによって抑えられたため、(b)における内側のピ



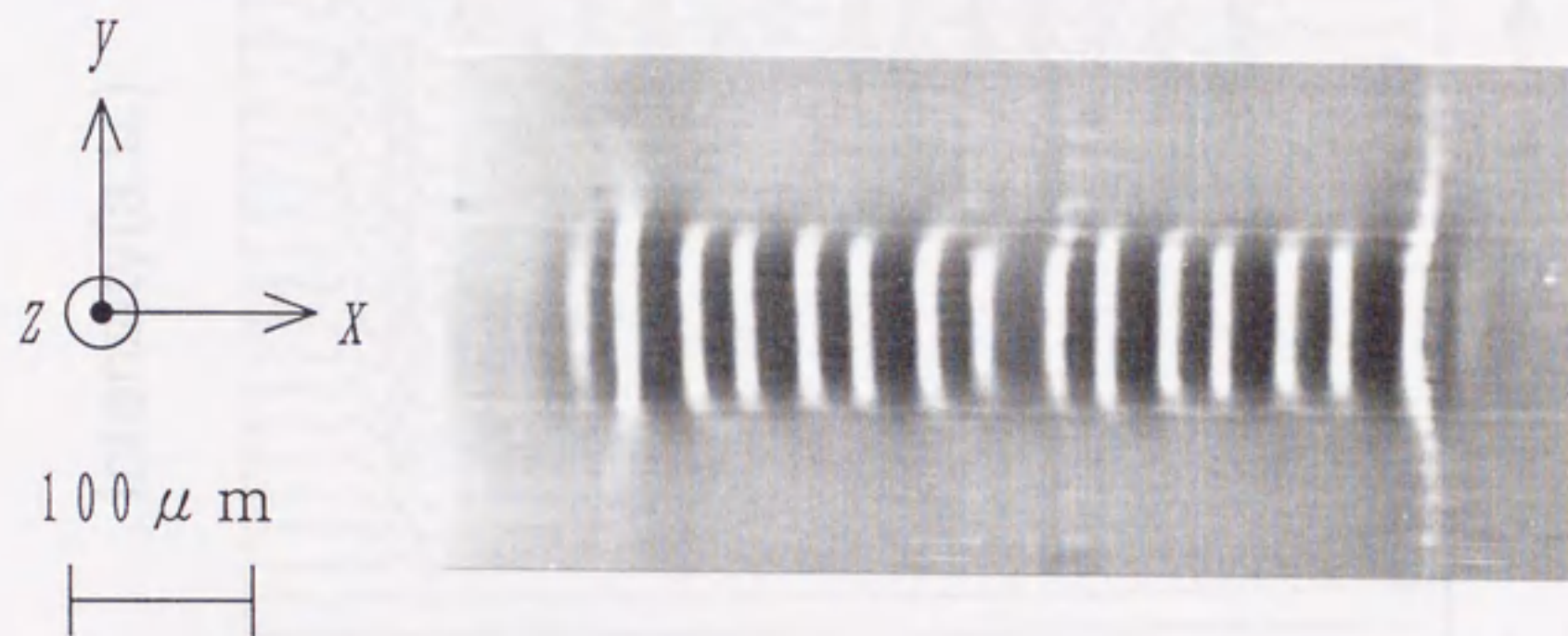


図3-9 IV型セルにおける Williams domain をビデオ撮影し、ビデオ・プリンターで出力したもの。印加電圧は、 $f = 1 \text{ kHz}$ ,  $V_L = V_R = 11.1 \text{ V}_{\text{rms}}$ 。両端の薄く短い明線は、I型セルでも見られた系の外の液晶が対流に引きずられ分子配向に歪みが生じたために生じたものである。それぞれのサブシステムに6本の明線すなわち6個のロールがあり、サブシステム間の領域に2本の明線（わずかに薄く短い）すなわち2個のロールがある。

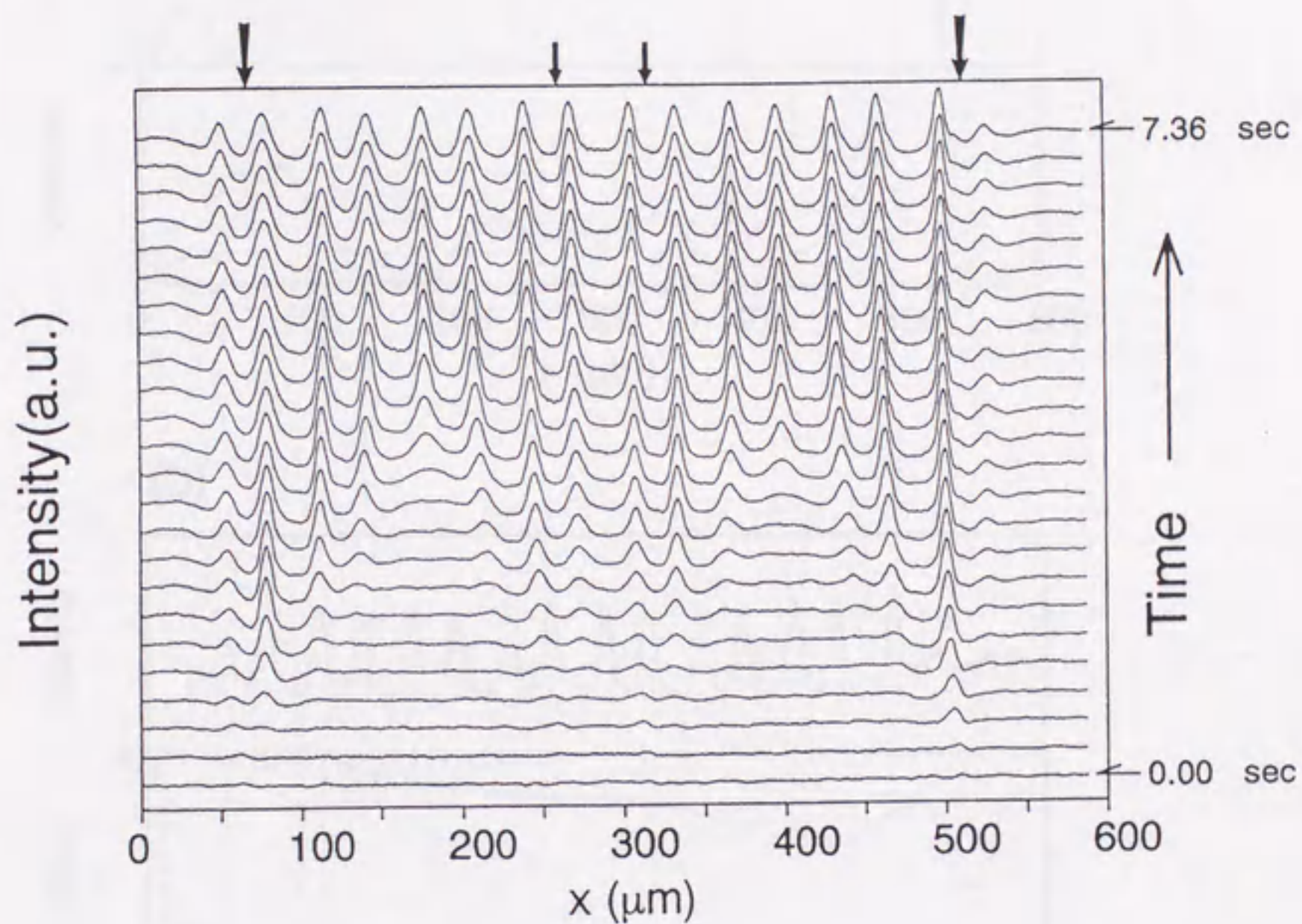


図3-10 IV型セルにおける Williams domain の1次元 profile の時間発展. 印加電圧は,  $f = 1$  kHz,  $V_L = V_R = 11.1 V_{\text{rms}}$ , サンプルング時間  $\Delta t = 0.32$  sec (測定時間7.36 sec). 矢印は側面の自由境界の位置を示す.

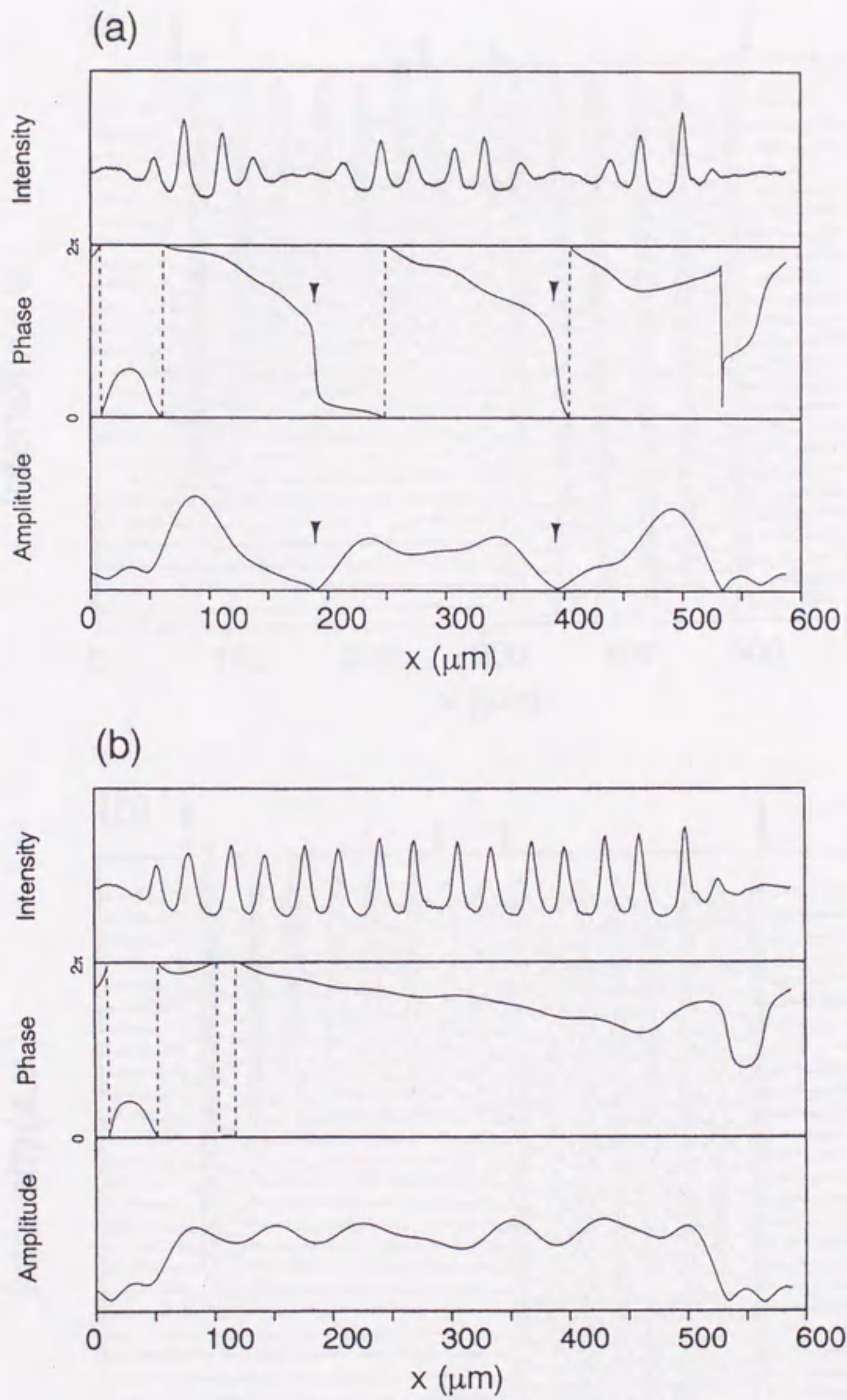
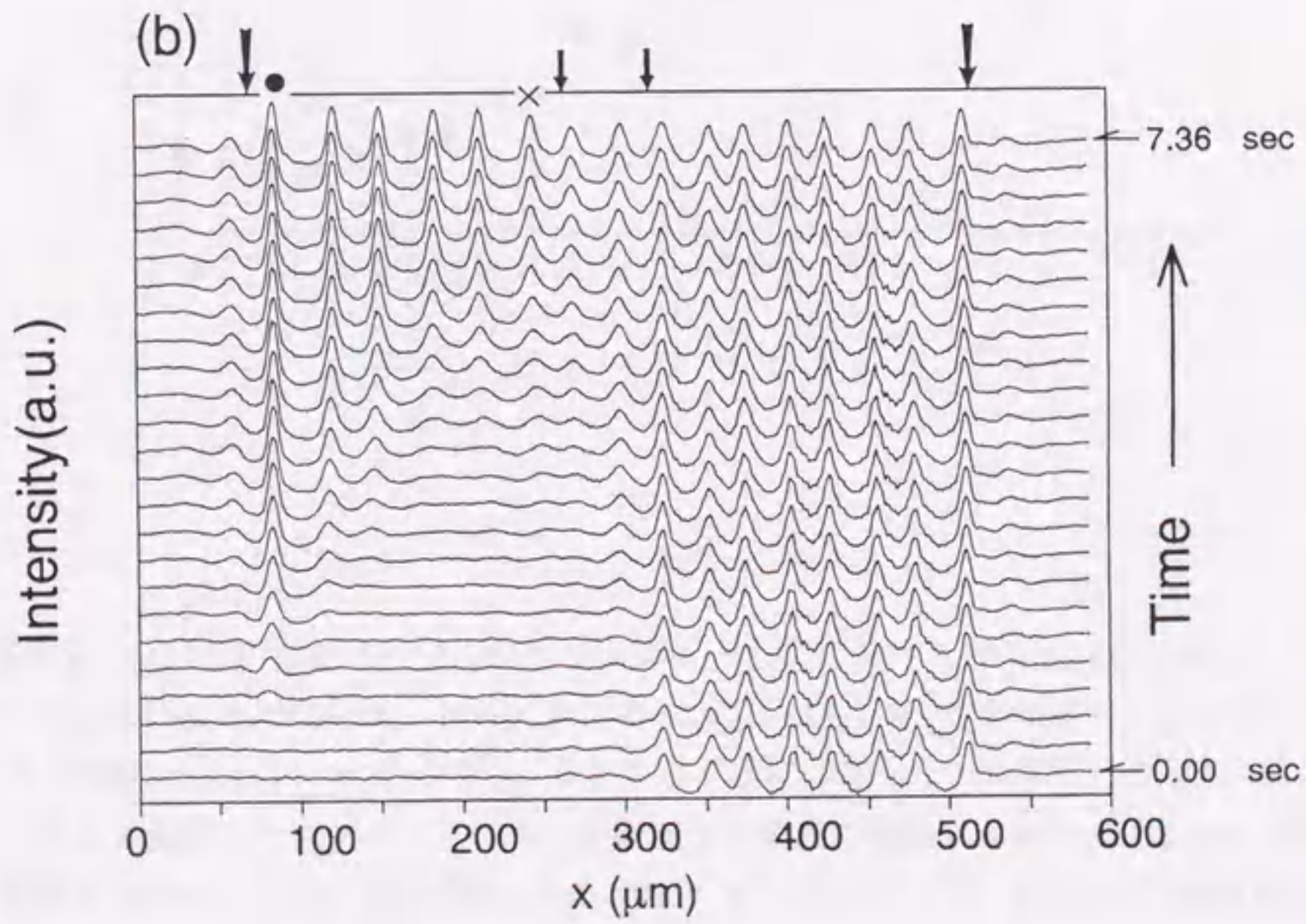
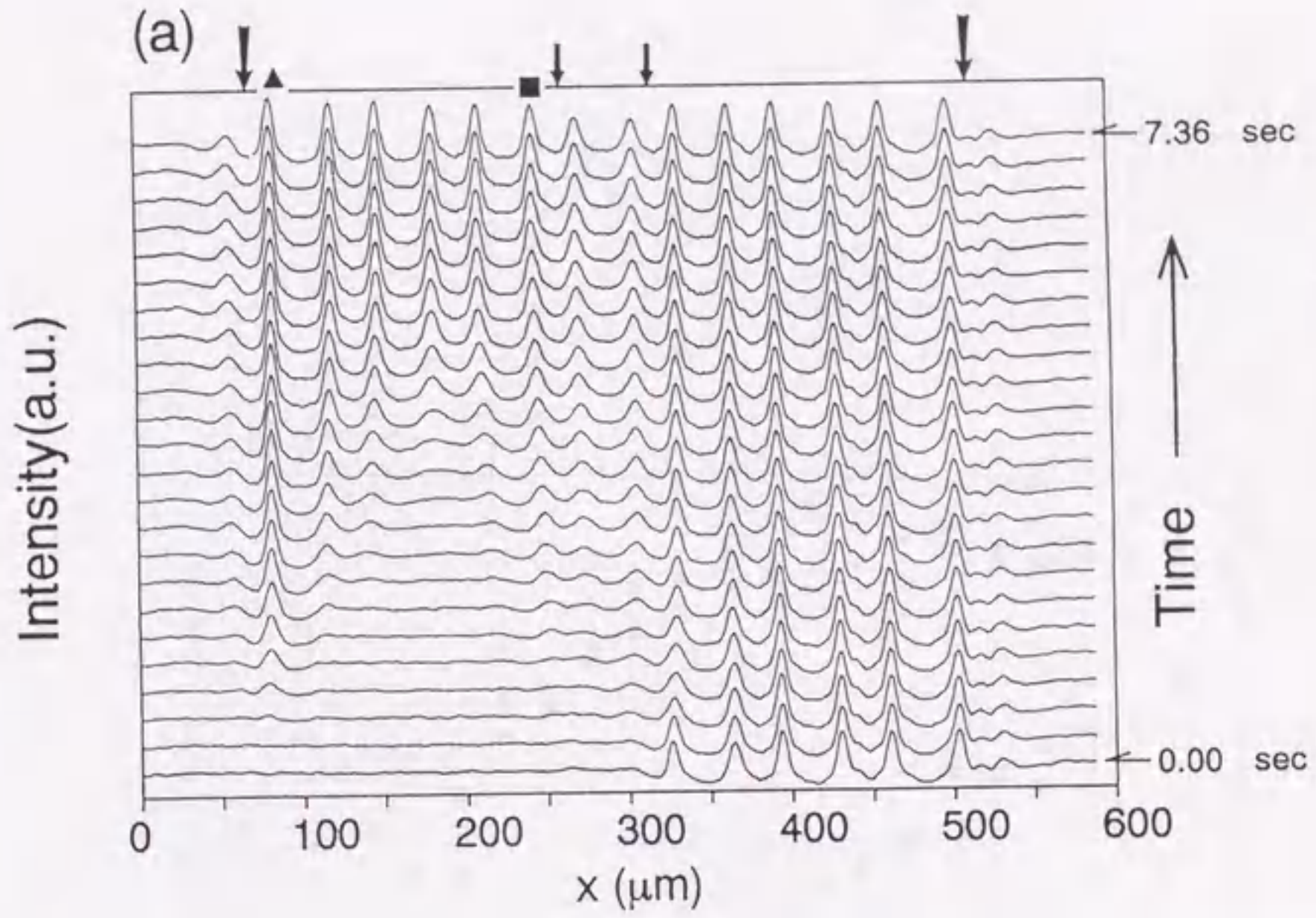


図3-11 図3-10における濃淡パターンの1次元 profile  $I(x)$  と局所的な位相  $\phi(x)$ , 局所的な振幅  $R(x)$ . (a) ;  $t = 2.88 \text{ sec}$ ,  $k_0 = 0.192 \mu \text{ m}^{-1}$ . 矢印は位相のとびと振幅の消滅の位置を示す. (b) ;  $t = 7.36 \text{ sec}$ ,  $k_0 = 0.192 \mu \text{ m}^{-1}$ .



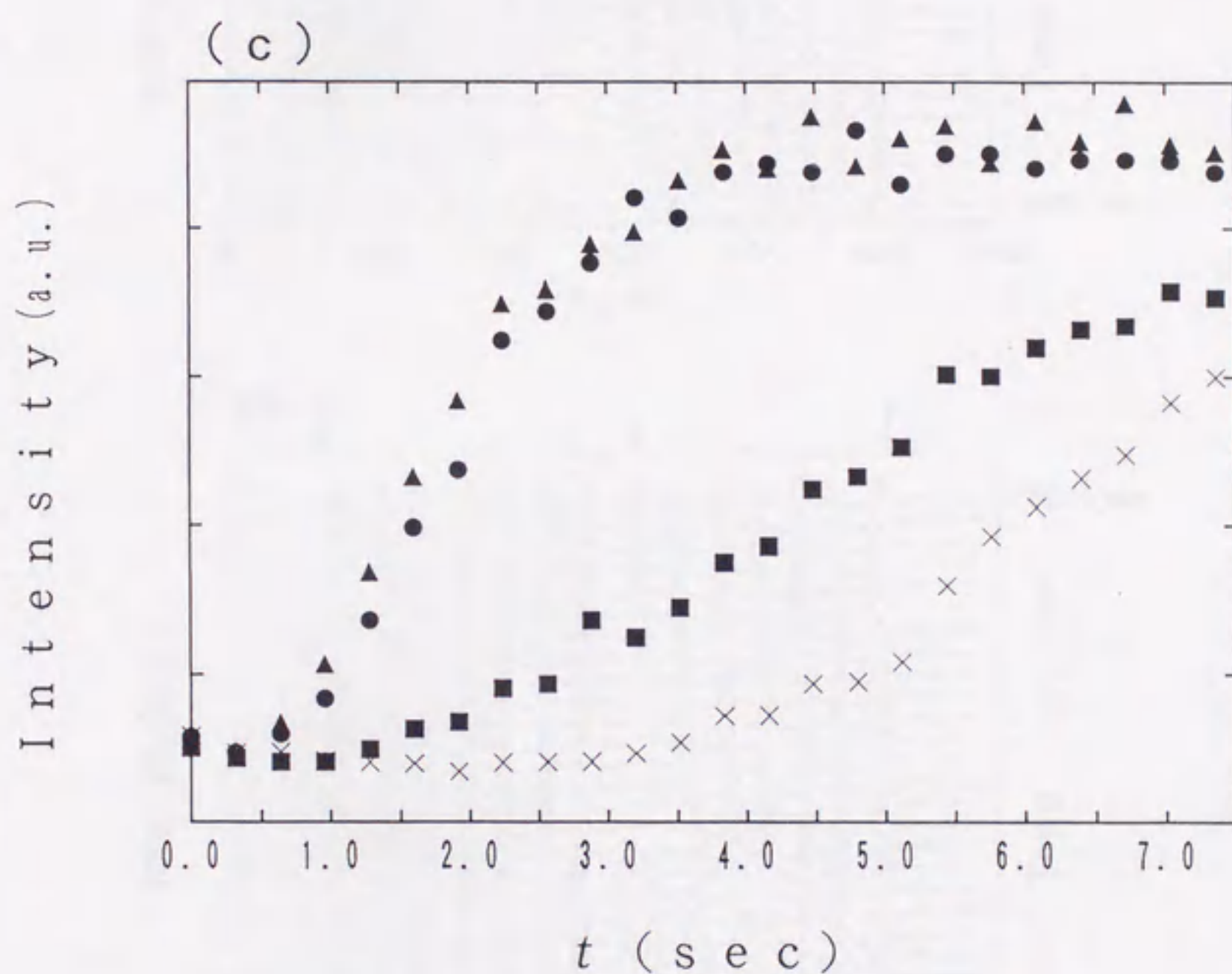


図3-12 (a) ; IV 型セルの左のサブシステム (L) における Williams domain の 1 次元 profile の時間発展. 初めに R にのみ  $V_R = 11.1 V_{\text{rms}}$  を印加し,  $t_w = 5 \text{ min}$  待った後, L に  $V_L = 10.9 V_{\text{rms}}$  をステップ状に印加した. いずれの電圧に対しても  $f = 1 \text{ kHz}$ . サンプリングは  $V_L$  を印加した瞬間に開始し,  $\Delta t = 0.32 \text{ sec}$  (測定時間 7.36 sec). (b) ; IV 型セルの左のサブシステム (L) における Williams domain の 1 次元 profile の時間発展. (a) と同様の手順で測定を行ったが, 初めに R に  $V_R = 12.0 V_{\text{rms}}$  を印加した. (a) と (b) における矢印は側面の自由境界の位置を示す. (c) ; (a) と (b) において印 (▲, ■, ●, ×) を付けたピークの時間発展.

ーク (X) の成長が遅れたものと考えられる。

図3-13は次のような手順の実験を行った結果である。初めにRにのみ  $V_R = 12.0 V_{rms}$  を印加し、Rのパターンが安定化するのに十分な時間 ( $t_w = 5 \text{ min}$ ) 待った後、Lに  $V_L = 12.0 V_{rms}$  を印加する。初めRは8ロール状態で安定状態にあり、Lは  $t = 4.8 \text{ sec}$  辺りで6ロール状態になりそのまま安定化する。そしてしばらくは、Lが6ロール、Rが8ロールの状態のままだが、 $t = 50 \text{ sec}$  辺りでRも6ロール状態へ変化していく。最終的に十分に発達したパターンでは ( $t = 56.2 \text{ sec}$ )、系全体で一様な周期をもつようになる。この現象は、RのロールがLに成長してきたロールに押されることによって、系全体の周期が一様になるように起こったものと考えられる。

各々のサブシステムでは、系のアスペクト比によって波数の選択が強く制限されるが、結合対流系全体での波数選択に対する制限はそれよりも弱いと考えられる。図3-14は、大きさの等しい電圧をIV型セルの両サブシステムに同時に印加したときのロール数の相図である。まず周波数  $f$  をある値に固定し、電圧を印加していない状態から電圧  $V V_{rms}$  をステップ状に印加する。パターンが安定になったら明線の数を数え、再び電圧を  $0 V_{rms}$  に戻す。充分時間をおいた後、前より  $18 \text{ mV}_{rms}$  高い電圧を同様に印加し、再び明線の数を数え、以下この手順を繰り返す。そして周波数を  $100 \text{ Hz}$  高くして同様の測定を行う。図内の数字は明線すなわちロールの数を表わし、●と▲は、それぞれLとRにおけるロール数の異なる状態間の境界を示す。例えば、 $f = 1000 \text{ Hz}$  では、両サブシステムとも  $V = 12.0 V_{rms}$  で6ロール状態から8ロール状態へ変化する。一方  $f = 1400 \text{ Hz}$  では、Lでは  $V = 13.3 V_{rms}$  で、Rでは  $V = 13.9 V_{rms}$  で6ロール状態から8ロール状態へ変化する。したがって、 $13.3 \sim 13.9 V_{rms}$  の範囲では、8ロールと6ロールが共存した状態にある。そのようなLとRでロール数の異なる非対称パターンは、電圧の周波数の高いところで、8ロールから10ロールへ変わる領域にも見られ、またその存在範囲は周波数が高いほど広がっている。

そのような非対称パターンの存在は、結合対流系の最も重要な特徴のひとつであると考えられる。それは次のように単一系との比較を考察することによって理解される。結合系のLの左端からRの右端までの距離は中間領域も含めて  $453 \mu\text{m}$  なので、幅  $453 \mu\text{m}$  の電極を用いて  $L_x = 453 \mu\text{m}$  の単一系を作成したと想定する。この単一系に、結合系で8ロールと6ロールが共存した状態になると全く同じ電圧を印加すると、中間領域の2ロールも含めて計16ロールが形成されると考えられる。ひとつの系には、

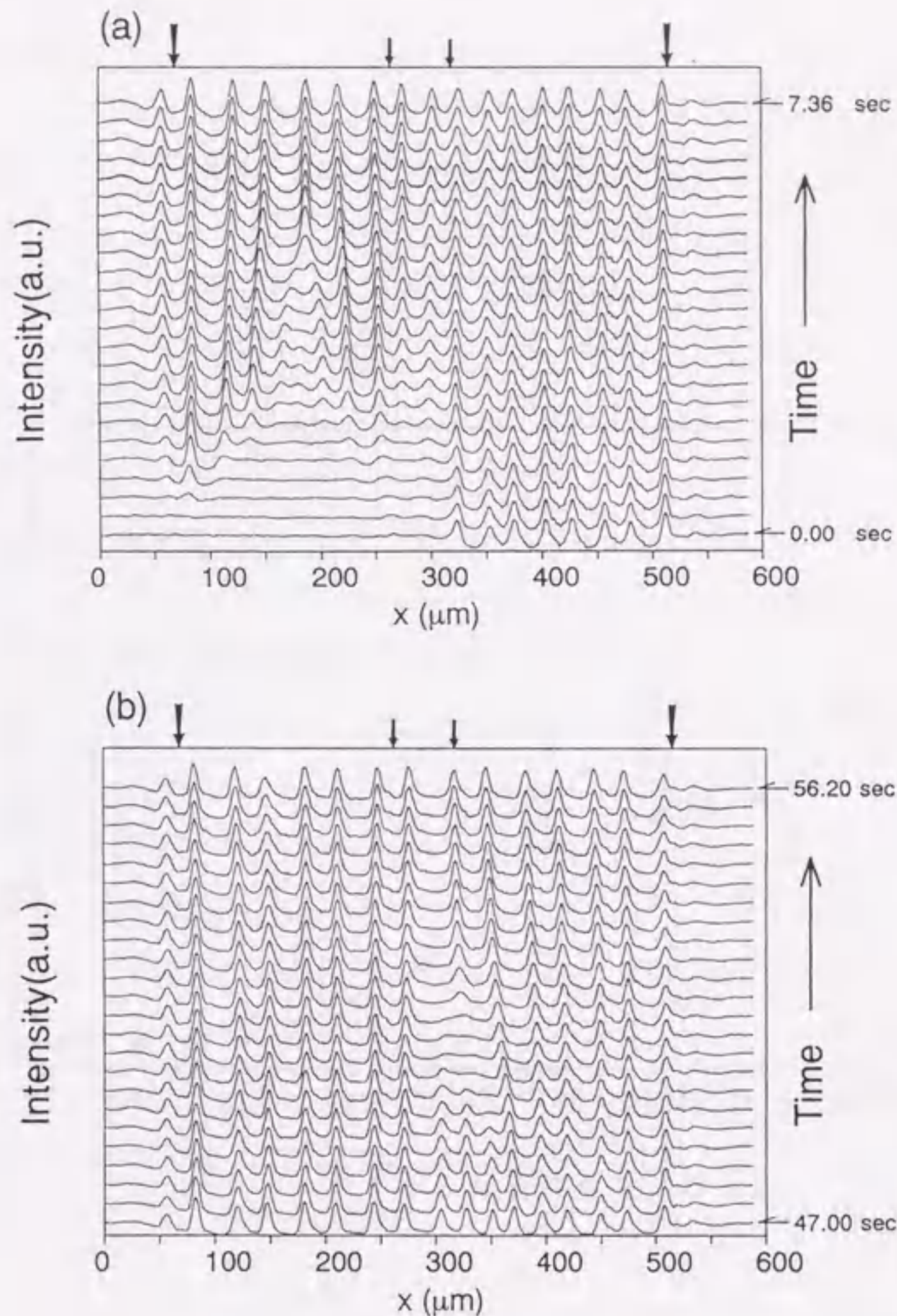


図3-13 (a); IV型セルの左のサブシステム(L)におけるWilliams domainの1次元profileの時間発展. 初めにRにのみ $V_R = 12.0 V_{rms}$ を印加し, $t_w = 5 \text{ min}$ 待った後,Lに $V_L = 12.0 V_{rms}$ をステップ状に印加した. いずれの電圧に対しても $f = 1 \text{ kHz}$ . サンプリグは $V_L$ を印加した瞬間に開始し, $\Delta t = 0.32 \text{ sec}$ (測定時間7.36 sec). (b); IV型セルにおけるWilliams domainの波数選択の過程.(a)の39.64 sec後( $t = 47.00 \text{ sec}$ )から,再び $\Delta t = 0.40 \text{ sec}$ で24本の1次元profileをサンプリグ(測定時間9.20 sec). (a)と(b)における矢印は側面の自由境界の位置を示す.

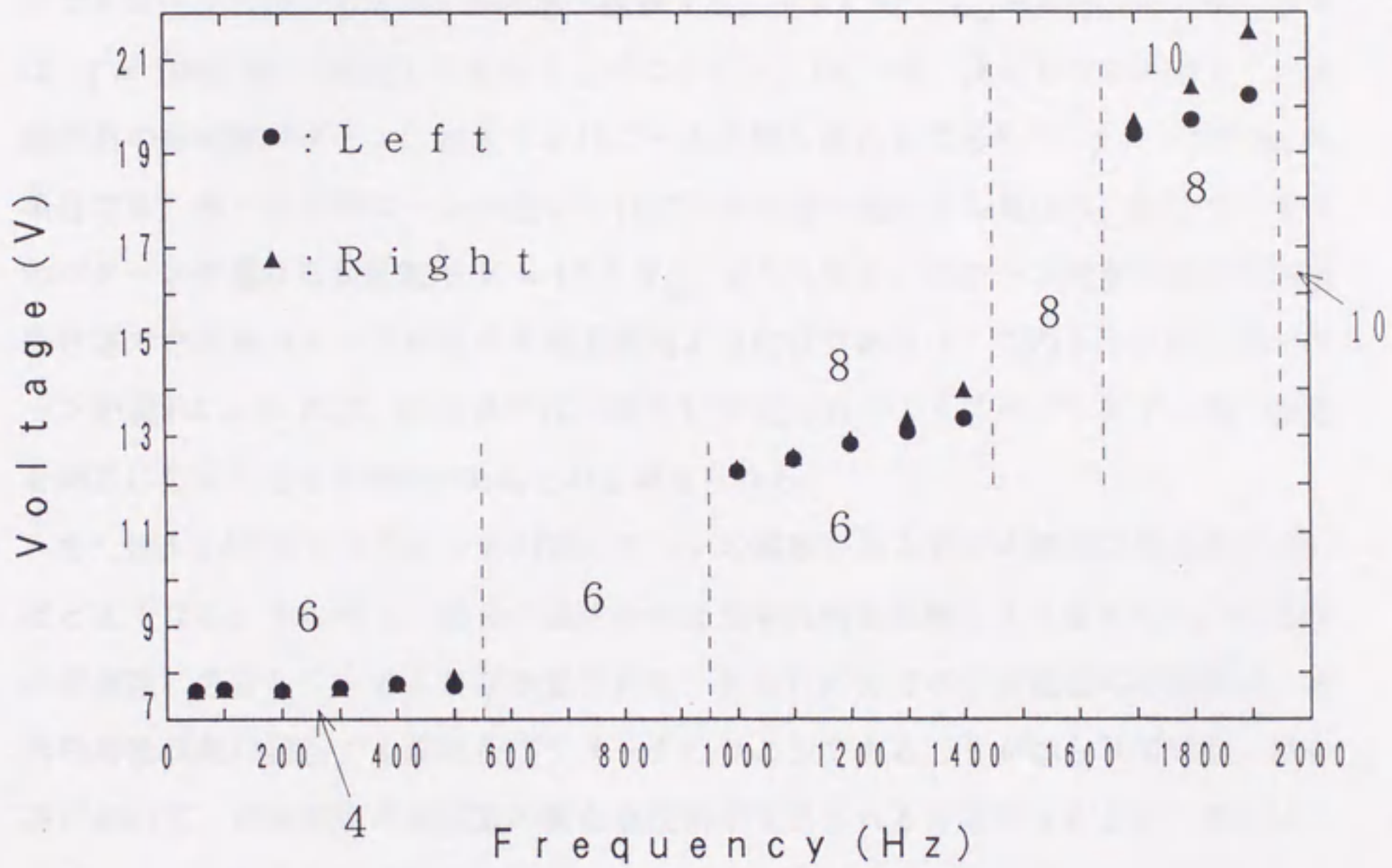


図3-14 IV型セルにおいて、LとRに同じ電圧を同時に印加したときのロール数の相図。横軸は電圧の周波数、縦軸は電圧の大きさ（実効値）を表わす。数字はロール数、●と▲は、それぞれLとRにおけるロール数が増える電圧を表わす。



右回りと左回りのロールが組になるので常に偶数個のロールが形成される。したがって中間領域の2ロールを除いた14ロールを2つのサブシステムに分けた場合を考えると、各々のサブシステムには7ロールずつになることができず、結果として8ロールと6ロールが共存したパターンが形成される。自由境界の系では、最も端のロールを電極の端から内や外へわずかにずらすことによって剛体境界の系よりも柔軟に波数選択を行うことができるため、このような非対称パターンが存在できたと考えられる。

しかし上述のように、 $f = 1000 \text{ Hz}$  では非対称パターンは現れず、LとRが同じ電圧で6ロール状態から8ロール状態へ遷移する。それに対し  $L_x = 453 \mu\text{m}$  の単一系では、 $f = 1000 \text{ Hz}$  に設定して電圧を上げていくと、14, 16, 18とロールが増えていき、結合系の非対称パターンに相当する16ロール状態も現れるであろう。 $f = 1400 \text{ Hz}$  の場合でも、単一系で14ロール状態から16ロール状態へ変化する電圧は、結合系で非対称パターンが現れる最低電圧  $V = 13.3 V_{\text{rms}}$  よりも低く、16ロール状態の電圧範囲も結合系で非対称パターンが現れる電圧範囲より広いであろう。このように非対称パターンが現れにくいのは、結合系では、図3-13で見られたようにサブシステム間で波数を同じにしようとする傾向があるためと考えられる。

また図3-14で見たように、非対称パターンの観察される電圧の範囲は周波数が高いほど広がる。すなわち、結合の強さや対流現象の相関距離のようなものが印加電場の周波数に依存していることが予想される。EHCにおける印加電場の周波数は、通常の対流現象に関しても重要なパラメータのひとつであることが知られている。結合系において、印加電場の周波数の新たな役割が見出される可能性もあるが、詳しいことについては現段階では明らかにならなかった。印加電場の周波数については、第5章で再度述べる。

図3-14の測定では、非対称パターンは常にLのロール数が多い状態で現れているが、その逆、すなわちRのロール数の方が多い場合も同じ確率で存在するはずである。これは、本研究で用いたIV型のセルにおいて、LとRの間に制御できないわずかな性質の違い、特にパターン形成の過渡過程に対する性質の違いがあったためと考えられる。LとRに同じ電圧を印加した状態で、Rのロール数の方が多い非対称パターンは、次のような手続きで観察することができた。まず初めに、Lに図3-14に●で示した電圧よりも低い電圧を印加し、一方Rには▲で示した電圧よりも高い電圧を印加した。その結果、Rのロール数の方が多い非対称パターンが形成された。それから、 $V_L$  を徐々

に上げていき、逆に  $V_R$  は徐々に下げていき、最終的に  $V_L = V_R$  にした。その間ロール数に変化はなかったため、結局、LとRに同じ電圧を印加した状態で、Rのロール数の方が多い状態が安定に存在できたことになる。これは、非対称パターンが2つの系を結合したことによって形成されたものであることを示唆する。

### 3.3.3 y方向に結合した対流系

図3-15はV型のセルにおける Williams domain である。それぞれのサブシステムに8本の明線すなわち8個のロールがある。上下のサブシステムのロールが繋がり、電極の無い中間領域にもパターンが現れている。このセルの場合も電圧の大きさや周波数を変えることによって、各々のサブシステムに4個、6個、8個、10個のロールをつくることができる。

ロール状の定常パターンが不安定になったとき (secondary instability), ロール軸方向 (y 方向) のアスペクト比が充分大きいなら空間パターンが欠陥をともなって揺らぎ始める。これは fluctuating Williams domain (FWD) とよばれている<sup>16)</sup>。一方、アスペクト比が充分小さいなら、空間パターンの時間的周期振動が生じるが<sup>17)</sup>、その電圧のしきい値はFWDのしきい値よりもわずかに高い。I型セルにおける  $\Gamma_y$  も充分小さいので、あるしきい値以上の電圧で空間パターンの時間的周期振動が生じる<sup>18)</sup>。このI型セルと同一の大きさ系をy方向に結合したV型セルでは、各々のサブシステムの電圧が空間パターンの時間的周期振動のしきい値以下にあるにも関わらず、空間パターンが揺らぐ現象が観察された。これは小アスペクト比系を結合することによって、y方向の実質的アスペクト比が大きくなり、空間パターンの時間的周期振動のしきい値以下の電圧でFWDが生じたものと考えられる。

図3-16は、次のような手順で観測した上のサブシステムUにおける Williams domain の形成過程である。まず初めに下のサブシステムWにだけ  $V_W = 27.5 V_{rms}$  を印加し、8ロールのパターンを形成する。そのパターンが安定化するまで5 min 待ち、 $V_U = 29.0 V_{rms}$  をステップ状に印加する。Williams domain の形成過程は、x軸に平行な直線上の1次元 profile をUにおいてWに近い場所と遠い場所の2ヶ所で観測した。その場所は図3-4において破線AとBで示してあり、図3-16(a)と(b)は、それぞれの直線上の1次元 profile の時間発展を示す。Wから遠い側 (図3-16(a)) では、初めに10ロールが現れるが、中央の1対 (図中に●で示してある) はすぐに対消滅し

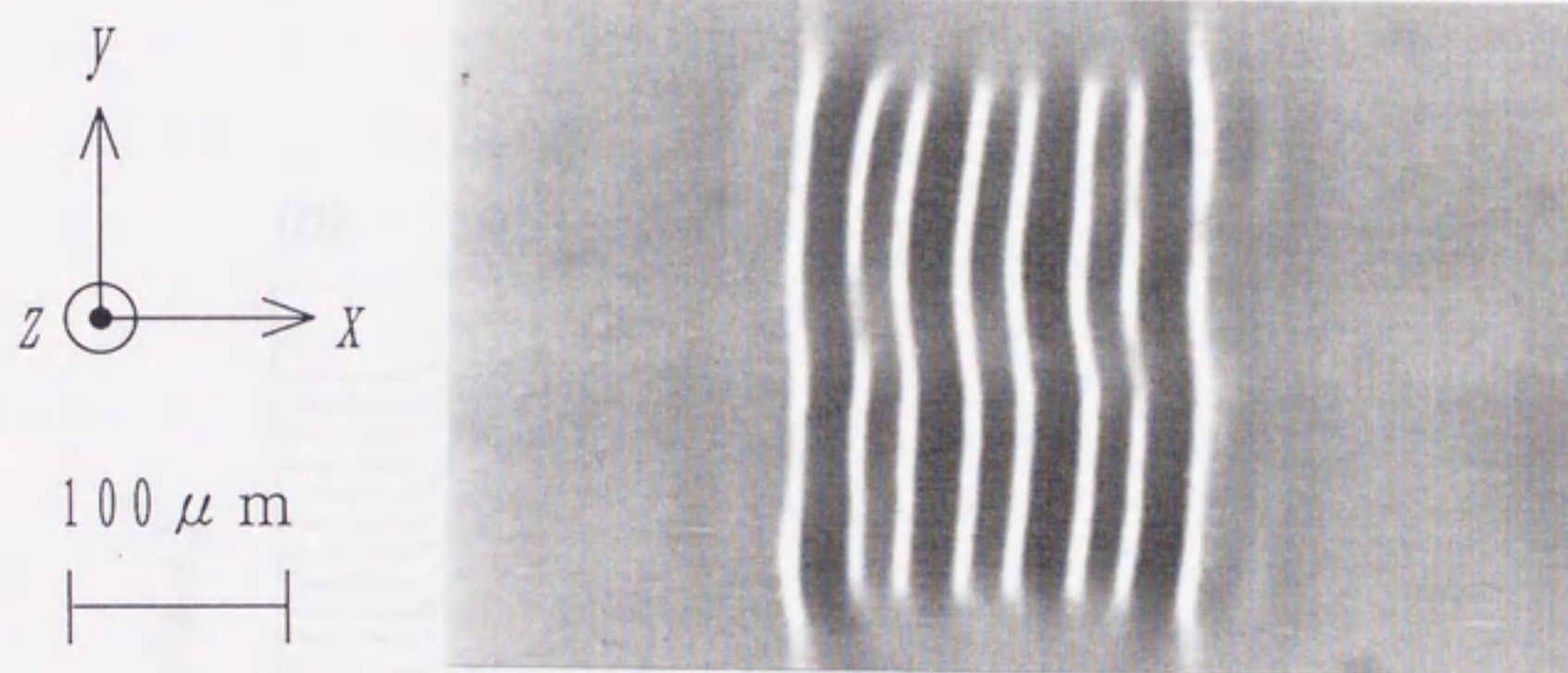


図3-15 V型セルにおける Williams domain をビデオ撮影し、ビデオ・プリンターで出力したもの。印加電圧は、 $f = 4.2 \text{ kHz}$ ,  $V_U = V_W = 27.5 \text{ V}_{\text{rms}}$ 。

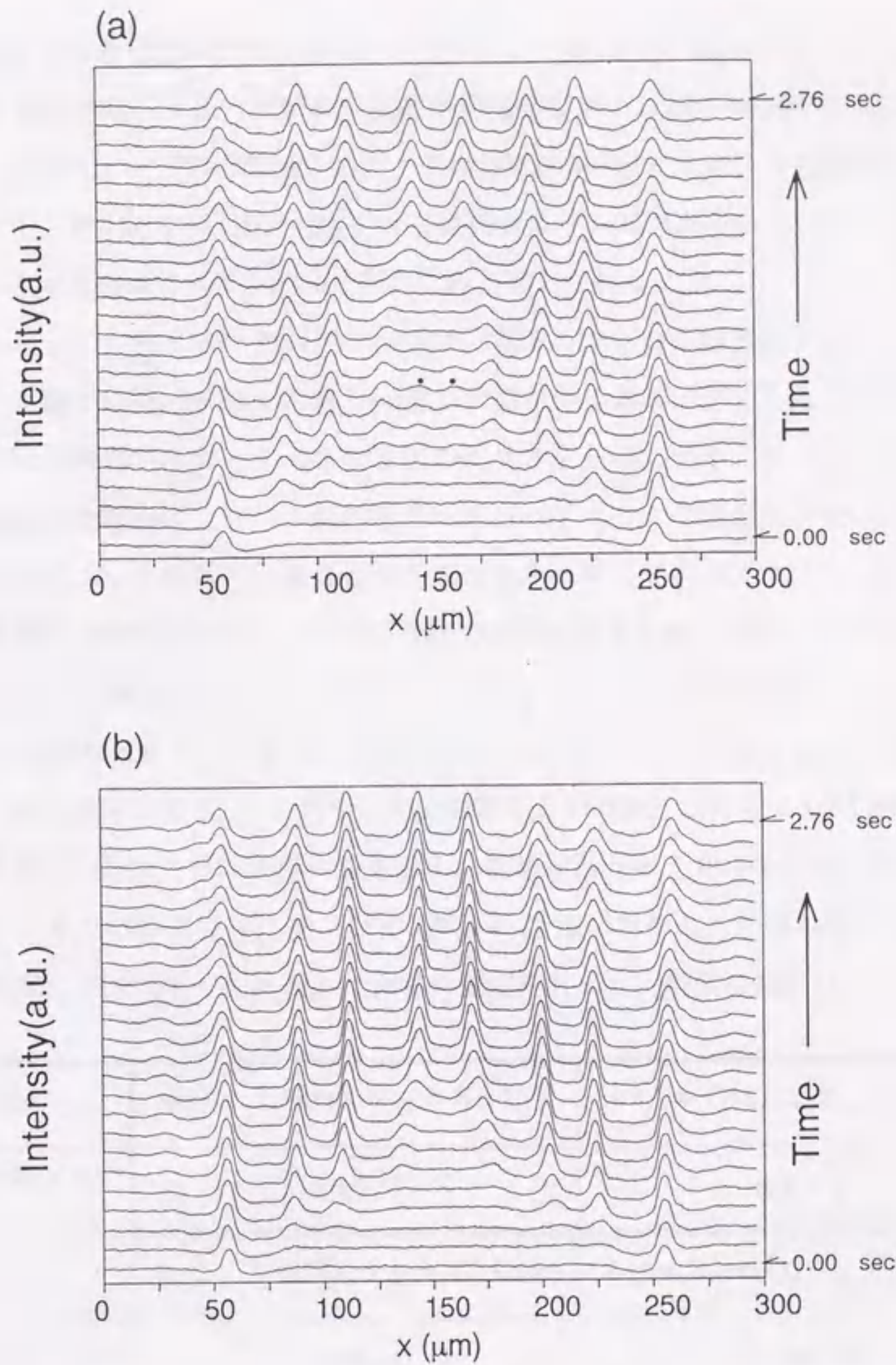


図3-16 V型セルの上のサブシステム(U)における Williams domain の1次元 profile の時間発展. 初めにWにのみ  $V_W = 27.5 V_{rms}$  を印加し,  $t_w = 5 \text{ min}$  待った後, Uに  $V_U = 29.0 V_{rms}$  をステップ状に印加した. いずれの電圧に対しても  $f = 4.2 \text{ kHz}$ . サンプリングは  $V_U$  を印加した瞬間に開始し,  $\Delta t = 0.12 \text{ sec}$  (測定時間  $2.76 \text{ sec}$ ). (a); 図3-4の破線A上で観測した1次元 profile の時間発展. ●はすぐに対消滅するロールのペアの位置を示す. (b); 図3-4の破線B上で観測した1次元 profile の時間発展.

て、結局8ロール状態が安定になる。一方Wに近い側(図3-16(b))では、直接8ロール状態が現れ安定になる。仮にWに電圧を印加せずロールが無い状態で、Uに  $V_U = 29.0 \text{ V}_{\text{rms}}$  をステップ状に印加すると、系全体で図3-16(a)と同様の発展過程を示す。したがって、Wに近い側(図3-16(b))で直接8ロール状態が現れるのは、Uに形成されるロールがWのロールに引き込まれるためと考えられる。

上述のように、各々のサブシステムでは、電圧の大きさや周波数を変えることによってロール数が4個、6個、8個、10個の状態をつくることができる。ある一定周波数の下では、外部パラメータである電圧の大きさを上げていくとロール数は増えていくが、結合系の場合は、ロール数の増える外部パラメータの臨界値がサブシステム間の相互作用によって修正されることが予測される。そこで次のようにして結合系における臨界電圧の測定を行った。まず初めに周波数  $f$  をある値に固定し、Wにだけ電圧  $V_W$  を印加して  $N_W$  個のロールを形成する。 $N_W$  ロール状態が安定化するまで待ち、それからUに  $V_U$  をステップ状に印加する。Uのパターンが安定になったら明線の数を読み取り、再び電圧を  $0 \text{ V}_{\text{rms}}$  に戻す。充分時間をおいた後、Uに前より  $35 \text{ mV}_{\text{rms}}$  高い電圧を同様に印加し、再び明線の数を読み取り、明線の数が増えたらその電圧を  $V_U^c$  とする。次に  $f$  をそのまま  $V_W$  を上げて  $(N_W + 2)$  個に増やし、同様の測定を行う。さらに  $f$  を変えて別のロール数  $N_W$  で同様の測定を行った。結果は表3-1にまとめた。

$N_W$	4 ( $f = 1.4\text{kHz}$ , $V_W = 8.71\text{V}$ )	6 ( $f = 1.4\text{kHz}$ , $V_W = 9.21\text{V}$ )
$V_U^c(4 \rightarrow 6)$	8.87 V	8.87 V
$N_W$	6 ( $f = 3.4\text{kHz}$ , $V_W = 16.98\text{V}$ )	8 ( $f = 3.4\text{kHz}$ , $V_W = 17.51\text{V}$ )
$V_U^c(6 \rightarrow 8)$	17.69 V	17.31 V
$N_W$	8 ( $f = 4.2\text{kHz}$ , $V_W = 27.52\text{V}$ )	10 ( $f = 4.2\text{kHz}$ , $V_W = 28.60\text{V}$ )
$V_U^c(8 \rightarrow 10)$	29.68 V	28.10 V

表3-1 Wのロール数  $N_W$  とUにおいてロール数の増える電圧  $V_U^c$  との関係。  
 $V_U^c(N_U \rightarrow N_U + 2)$  は、ロール数が  $N_U$  から  $N_U + 2$  に増える電圧を表わす。電圧は実効値を表わす。

Uのロール数が4から6に増える電圧  $V_U^c$  は、Wの状態の影響をほとんど受けないが、6から8に増える電圧は、Wが8のときよりも6のときの方が高い。さらにUのロール数が8から10に増える電圧  $V_U^c$  は、Wが8のときと10のときでは、その差はさらに大きくなる。8ロール状態にあるLは、図3-16に見られたようにしてUを8ロール状態に引き込むのでUは10ロール状態になりやすく、 $V_U^c$  が上がるものと考えられる。つまり、8ロール状態にある下のサブシステムは、上のサブシステムを8ロール状態で安定化させ、ロール数の増える不安定性を抑えている。

$N_W$  に対する  $V_U^c$  と  $N_W + 2$  に対する  $V_U^c$  の差が、 $N_W$  が4, 6, 8と大きくなるにつれて広がるのは、次のように説明される。表3-1に示した実験では、電圧の周波数  $f$  を上げることによって  $N_W$  は増えるが、同時に電圧の大きさ  $V_W$  も上げなければならない。EHCでは印加電圧が大きいほど強い流れが生じるので、自由境界の対流系では、 $f$  が高いほど電極の無い部分へロールがはみ出す量が増えると考えられる。したがって結合系では、 $f$  が高いほどサブシステム間の中間領域へロールが大きくはみ出し、図3-15で見たような上下のサブシステム間のロールの繋がりが強くなり、ロール数が増える不安定性を抑えていると考えられる。

### § 3.4 まとめ

まず初めに、帯状パターン電極によってセル内の一部の液晶にのみ電場が印加されるようにした Free Lateral Boundary Cell を用いて、アスペクト比が小さく側面が自由境界の系における周期パターン (Williams domain) の形成過程を調べた。その結果、次のことがわかった。

- 1) 対流ロールは系の両端から現れ、中央に向かって成長する。
- 2) ロールは中央で衝突し、そこでは周期パターンの位相のとびと振幅の消滅が生じる。

また、一方の側面が自由境界条件で、もう一方の側面が剛体境界条件である系において形成過程を観察し、境界条件による違いを調べた。その結果、

- 3) 剛体境界でのロールの出現が自由境界よりも遅れること

がわかった。

上述の photo lithography を用いれば、円板状や円環状のパターン電極を加工することもできる。液晶分子の配向方向を制御できることと組み合わせれば、興味深い現象が起こることが期待できる。特に、円環状のパターン電極を用いれば、周期境界条件をもつ対流系を作ることができ、この章の実験の自由境界や剛体境界と比較するという観点から興味を持たれる。

さらに、自由境界条件をもつ2つの同一の対流系を結合した「結合対流系」を初めて開発した。まず液晶分子の配向方向 ( $x$  方向) に結合した系でのパターン形成について調べ、次のことがわかった。

- 4) 各々のサブシステムでは上述の小アスペクト比系と同様に系の両端から出現したロールが中央に向かって成長するが、サブシステムどうしが接している内側の境界からのロールの出現は外側の境界よりも遅れる。位相のとびと振幅の消滅も小アスペクト比系と同様にロールの衝突する場所で生じ、サブシステム間の中間領域には現れなかった。
- 5) 一方のサブシステムでのパターンの成長過程は、もう一方のサブシステムの状態に影響される。同一の電圧の下では、サブシステムは同じロール数になり、系全体で周期を一様にしようとする傾向がある。しかし、各々のサブシステムでロール数が増える臨界電圧付近では、左右のサブシステムでロール数が異なる非対称パターンが現れた。

次に、液晶分子の配向方向 ( $y$  方向) に結合した系でのパターン形成について調べた。この系では、一方にすでに安定なパターンが存在する状態でもう一方のサブシステムにどのようにパターンが形成されるかを調べ、空間パターンの引き込み現象を観測した。それによって次のことがわかった。

- 6) 一方のサブシステムにあらかじめ存在するパターンと同じ波数をもったパターンが、後からもう一方のサブシステムに形成される場合、相手に近い場所ほど相手に引き込まれて速やかに安定なパターンが形成されることがわかった。
- 7) ロール数が増加する臨界電圧が、相手のサブシステムの状態に影響されることがわかった。

結合対流系は同一のサブシステムからなるので、この章の実験で観測した現象は左

右あるいは上下のサブシステムを入れ変えても生じる。また、印加電圧の周波数と結合の強さの関係、アスペクト比を変えるなどによって結合をもっと強くしたときに観測される現象、空間パターンの時間振動における相互作用などが今後の課題として上げられる。

なおこの章で述べた研究結果は、

Y. Hidaka, K. Shimokawa, T. Nagaya, H. Orihara and Y. Ishibashi: Evolution Processes of the Williams Domain in the Electro-Hydrodynamic Systems with Free and Rigid Lateral Boundaries, *J. Phys. Soc. Jpn.* **63** (1994) 1698-1712.

Y. Hidaka, T. Nagaya, H. Orihara and Y. Ishibashi: Pattern Formation in the Two Electro-Hydrodynamic Systems Coupled through Free Lateral Boundaries, to be published in *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* (Proceeding of 15th International Liquid Crystal Conference).

に発表された。



## 第4章 振動する対流パターンにおける 少数自由度カオス

### § 4.1 はじめに

#### 4.1.1 カオスと対流現象

一般にカオスとは「決定論的な系の作り出す非周期的時間振動」と定義されている。決定論的系として、次のような有限個の変数  $\mathbf{x} = (x_1, x_2, \dots, x_N)$  の従う常微分方程式系（力学系）を考える。

$$\frac{dx_i}{dt} = F_i(x_1, x_2, \dots, x_N) \quad (i = 1, 2, \dots, N). \quad (4.1)$$

ただし  $N \geq 3$  で、 $F_i(\mathbf{x})$  は非線形項を含む。(1.5) 式の Lorenz モデルはそのような力学系のひとつである。変数ベクトル  $\mathbf{x}(t)$  の張る  $N$  次元空間を相空間というが、 $\mathbf{x}(t)$  は (4.1) によって時間  $t$  の経過とともに相空間の中に軌道（相軌道）を描いていく。特に、充分時間が経過した後、初期条件によらずに軌道がある領域に引き込まれることがあり、このときこの領域をアトラクタとよぶ。例えば、系が定常状態にある場合アトラクタは固定点である。さらに、系が不安定性を起こし周期振動を生じれば、固定点は分岐現象をおこし、リミットサイクルとよばれる閉曲線がアトラクタとして相空間に現れる。そしてさらに不安定性を起こし準周期振動（2つの振動数をもつ振動）が生じれば、リミットサイクルはトーラスとよばれる“うきわ”状曲面のアトラクタに分岐する<sup>脚1</sup>。

カオスを生ずるメカニズムを相軌道に関して大まかに言うと、

- (1) 軌道の指数関数的不安定性
- (2) 軌道が非線形性によって相空間の有限領域に閉じ込められること

の2つである。(1)によって相空間の微小に離れた点から出発した軌道は指数関数的に

<sup>脚1</sup> 固定点からリミットサイクル、さらにトーラスへの分岐をそれぞれ「ホップ分岐」とよぶ。それを拡張し、新たな振動モードが生じて、より高次元のトーラスが現れる現象もホップ分岐とよぶ。

離れていく (stretching) が、離れっぱなしになることはできないから(2)によってどこかで反転 (folding) しなければならず、その結果軌道は初期値の情報を急速に失いながら極めて複雑にふるまう。相軌道上に有限領域の初期値の集合を考えると、時間の経過とともに stretching と folding によって引き延ばされ折り畳まれ、相空間にはストレンジ・アトラクタとよばれるフラクタル構造をもった軌道が描かれる<sup>1,2)</sup>。

3次元相空間において、アトラクタの軌道に接することなくうまく交差するような適当な断面  $\Sigma$  をとることを考える。軌道が  $\Sigma$  と交差するごとに  $\Sigma$  上に点  $r_1, r_2, \dots$  が打たれるので、 $\Sigma$  上の2次元写像 (2階の差分方程式) 、

$$r_{n+1} = P(r_n) \quad (n = 1, 2, \dots) \quad (4.2)$$

を定義することができる。断面  $\Sigma$  はポアンカレ断面、写像  $P$  はポアンカレ写像とよばれる。しかし例えば、軌道がトーラスである場合、ポアンカレ断面には楕円が現れるので、ポアンカレ写像は位相角のみの1次元写像に近似できる。またストレンジ・アトラクタでは、stretching により上の軌道は1方向に激しく潰されるため、この場合もポアンカレ写像を1次元写像に近似できる。このように、(4.1) のような常微分方程式系は、ポアンカレ断面を導入することにより、

$$x_{n+1} = f(x_n) \quad (n = 1, 2, \dots) \quad (4.3)$$

のような1次元写像に帰着できる。

常微分方程式系をコンピュータを用いて解き、ストレンジ・アトラクタをディスプレイに表示させることによってカオスのメカニズムを視覚的に理解することができるが、より本質的な性質のみを抽出しようとする場合は、一般にはカオスを示す離散力学系、特に(4.3) のような1次元写像が調べられている。その中でも特にくわしく調べられている性質としては、カオスへの分岐過程があげられる。これは、外部パラメータを大きくしていったとき周期振動がどういう道すじをたどってカオスへ至るかの問題で、その主なものは次の3つである。

#### 1. 周期倍分岐

パラメータを大きくしていくとともに周期が2倍、4倍、8倍、 $\dots$ と次々に長くなっていき、ついには無限に長い周期の振動となりカオスに至る。

#### 2. 間欠的遷移

初めの周期振動 (ラミナー) の中に間欠的に不規則な振動状態 (バースト) が現

れ始め、パラメータを大きくしていくとバーストの占める割合が徐々に大きくなり、最終的に全体が不規則な振動状態になりカオスに至る。

### 3. 準周期崩壊過程

安定に存在していたトーラスが、パラメータを大きくしていくとともに表面に折り返しによる“しわ”を生じ始め (stretching と folding による)、ストレンジ・アトラクタへ至る。

対流系の大きな特徴のひとつに、乱流に至る道筋がたいへん明確なことが上げられる<sup>3,4)</sup>。熱伝導状態から対流状態へ遷移し、さらに温度差を大きくしていくと、対流パターンは振動し次第に壊れていき、さまざまな不安定性を生じ最終的に乱流状態へ至る。§ 1.1 で述べたように、対流パターンが崩壊して乱流へ至る過程には空間的な側面<sup>5,6)</sup>と時間的な側面<sup>7)</sup>があるが、後者に関しては、近年カオスの概念と結び付いた研究が非常に活発に行われている。そして、さらにその結び付きには、対流系をカオスの実験的検証に用いるという観点と、カオスを乱流のモデルとするという観点がある。

Lorenz モデルに代表されるように、カオスの概念は発見初期から対流系と密接な関係があった。これ以降、電子回路、化学系、光学系などあらゆる系からカオスが発見されているが、カオスに関する実験的な検証のほとんどはRB対流系で最初になされてきた。また流体力学の研究については、カオスの概念が乱流の初期状態のモデルとなり得ると考えられている。カオス発見以前、乱流現象に関しては、L. D. Landau による「外部パラメータを大きくしていけば周波数の異なる振動が1つ1つ生じ、最終的に無限個の振動が発生することによって乱流にいたる<sup>8)</sup>。」という物理的イメージが支配的であった。この考え方を相空間にあてはめてみると、固定点がリミットサイクル、トーラスと連続的にホップ分岐し、最終的に「乱流とは無限次元相空間における無限次元トーラスである。」となる。このように多重周期振動の多重度無限大の極限として乱流が生じるというのは自然な考え方であるが、乱流への遷移過程においてこのような無限の連鎖が起こるためには、それぞれの多重周期振動が安定に生じうる外部パラメータの有限の範囲が存在しなければならない。しかし実際にはそのような多重周期振動は安定には存在せず、数回の分岐を経て乱流へ至ることが、理論的にも<sup>9)</sup>実験的にも<sup>10)</sup>立証された。そして、系が無限個のモードを生み出すメカニズムをもたなくても、数個のモードと非線形相互作用があれば非周期振動を生じうることがわか

り、多重周期振動と無限次元トーラスにかわってカオスとストレンジ・アトラクタが乱流の時間的不規則振動のメカニズムの本質と考えられるようになった。十分に発達した乱流は多自由度の現象であると考えられるが、比較的弱い乱流では、少数の自由度で不規則な振動が生じていることがカオスによって示唆され、乱流研究に重要な情報を与えた。

対流系をカオスの実験的検証に用いるという観点とカオスを乱流のモデルとするという観点のどちらの観点に関しても、「対流系において観測される不規則な時間振動を、カオスの概念を用いて理解することが可能か。」という実験テーマが非常に重要である。ところがカオスは時間に関する現象であるのに対し、乱流現象を含む対流現象は空間自由度のある系で生じる現象であるため、時間的な情報だけを抽出する工夫が必要となる。§1.1で述べたように、対流系のアスペクト比を小さくすれば、空間の自由度が抑えられてこれが可能となる。小アスペクト比のRB対流系においては、流体変数（温度や流速）の局所的な時間変動が測定され、得られた時系列からカオスの特徴が取り出せるかどうか議論されている。

カオスへの分岐過程で述べた“外部パラメータ”は、対流系の外部パラメータすなわちRB対流で言えば温度差に相当する。RB対流においては、周期倍分岐<sup>11)</sup>、間欠的遷移<sup>12)</sup>、準周期崩壊過程<sup>13)</sup>などがこれまで実際に観測されている。ある系がこのような遷移過程を経て不規則な振動を示すと、次はその不規則な振動が低次元力学系におけるカオスであるかどうか問題となるが、そのためには相空間における軌道の性質を調べねばならない。一般的には、相軌道の構造のフラクタル性を表すフラクタル次元が有限非整数の値をとり、軌道の不安定性を示すLyapunov指数が1つ以上正であれば、カオスであるといつてよい。ところが通常実験では1変数のみが測定されるので、その1変数から相空間の情報を引き出さねばならない。そのために1変数からアトラクタを再構成できる「埋込み」という手法が提案され、F. Takensが数学的な正当性を証明した（くわしくは4.3.2で述べる）。これによって実験においてストレンジ・アトラクタを観測することが可能になり、対流系をはじめとしてさまざまな系でカオスが発見されることとなった。

#### 4.1.2 Williams domain の angle-deflective oscillation

液晶のEHCの( $\Gamma_x$ ,  $\Gamma_y$  どちらも十分に大きい) 大アスペクト比系では、Williams

domain (WD) が形成された後, さらに印加電場を大きくしていくとともに一般に次のような不安定性の遷移過程を示す<sup>14)</sup>. まずWDが不安定化し, 縞状パターンが欠陥をともなって揺らぎ始める. これを fluctuating Williams domain (FWD) とよぶ.

(欠陥の位置や個数が不規則に変化するので, “欠陥乱流”ともよばれている.) さらに電場を大きくすると, 2次元周期構造をもった grid pattern (GP) に変化し, 最終的には2.2.1でも述べた dynamic scattering mode (DSM) へ遷移する. これまでEHCにおける乱流への遷移過程は, このような大アスペクト比系において, 空間パターンの遷移過程の観察<sup>5,6,15,16)</sup>と安定性<sup>17,18)</sup>, 欠陥乱流<sup>16-19)</sup>, 2種類のDSM<sup>6,19)</sup>などが調べられている.

一方, 小アスペクト比のセルでは (特に  $y$  方向のアスペクト比  $\Gamma_y$  の小さなセルでは), WDが不安定化してもFWDにはならず, WDが周期的にその傾き角を変える angle-deflective oscillation とよばれる振動を示すことが報告されている<sup>20-23)</sup>(図4-1). この振動は, セルの  $xy$  面内の1点を透過してくる光の強度を測定することによって観測することができる (図4-2). 初めに, 振動していないWDの明線上を初期観測点 (実際は有限の大きさの小領域) としておけば, WDが傾くと観測される光の強度が落ちる. したがって, (a)図のような angle-deflective oscillation の傾き角に対応する透過光強度を測定して(b)図のような時系列を得ることができる. Tsuchiyaらは, この方法によって周期倍分岐を観測した<sup>23)</sup>.

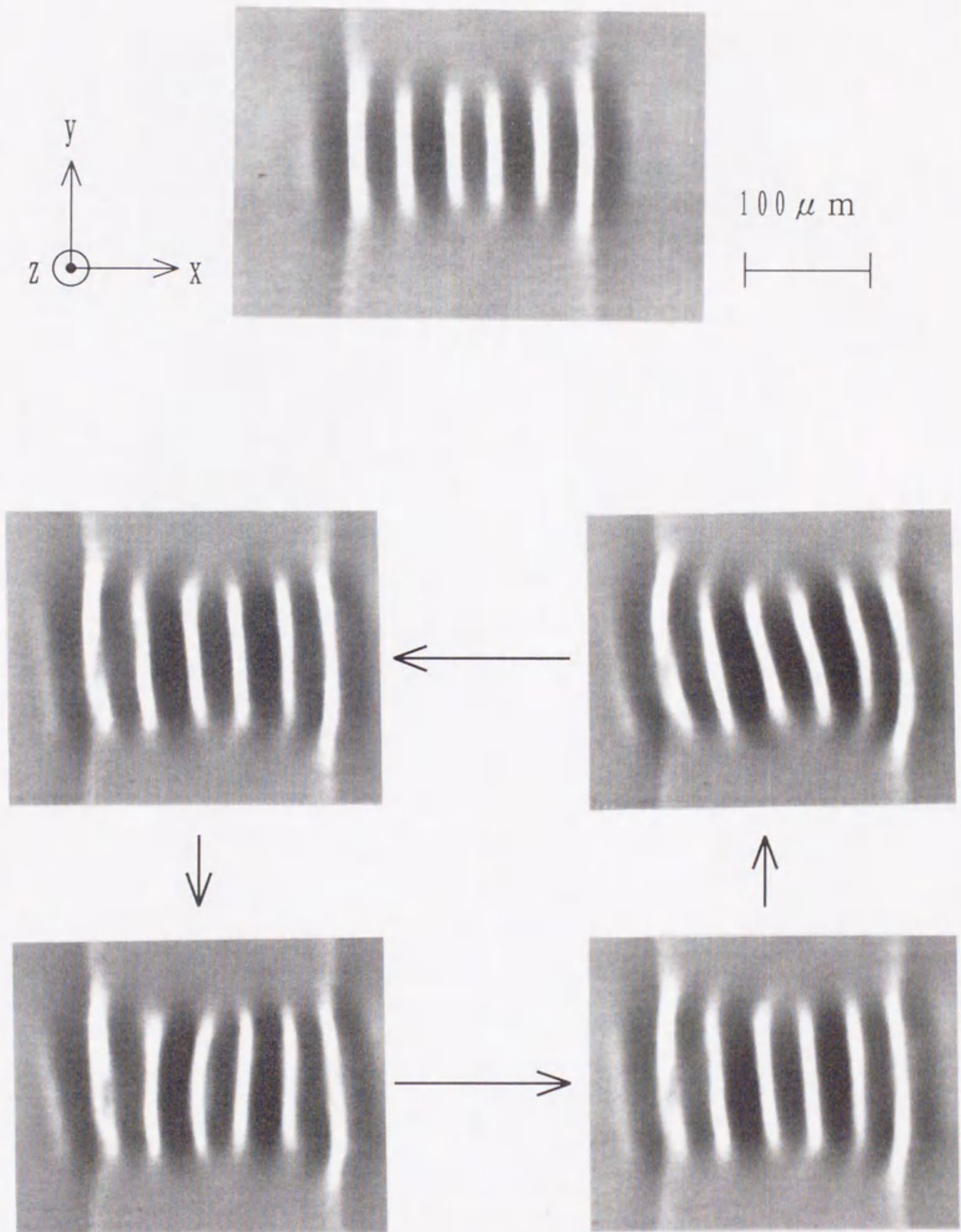


図4-1 静止した Williams domain と angle-deflective oscillation.

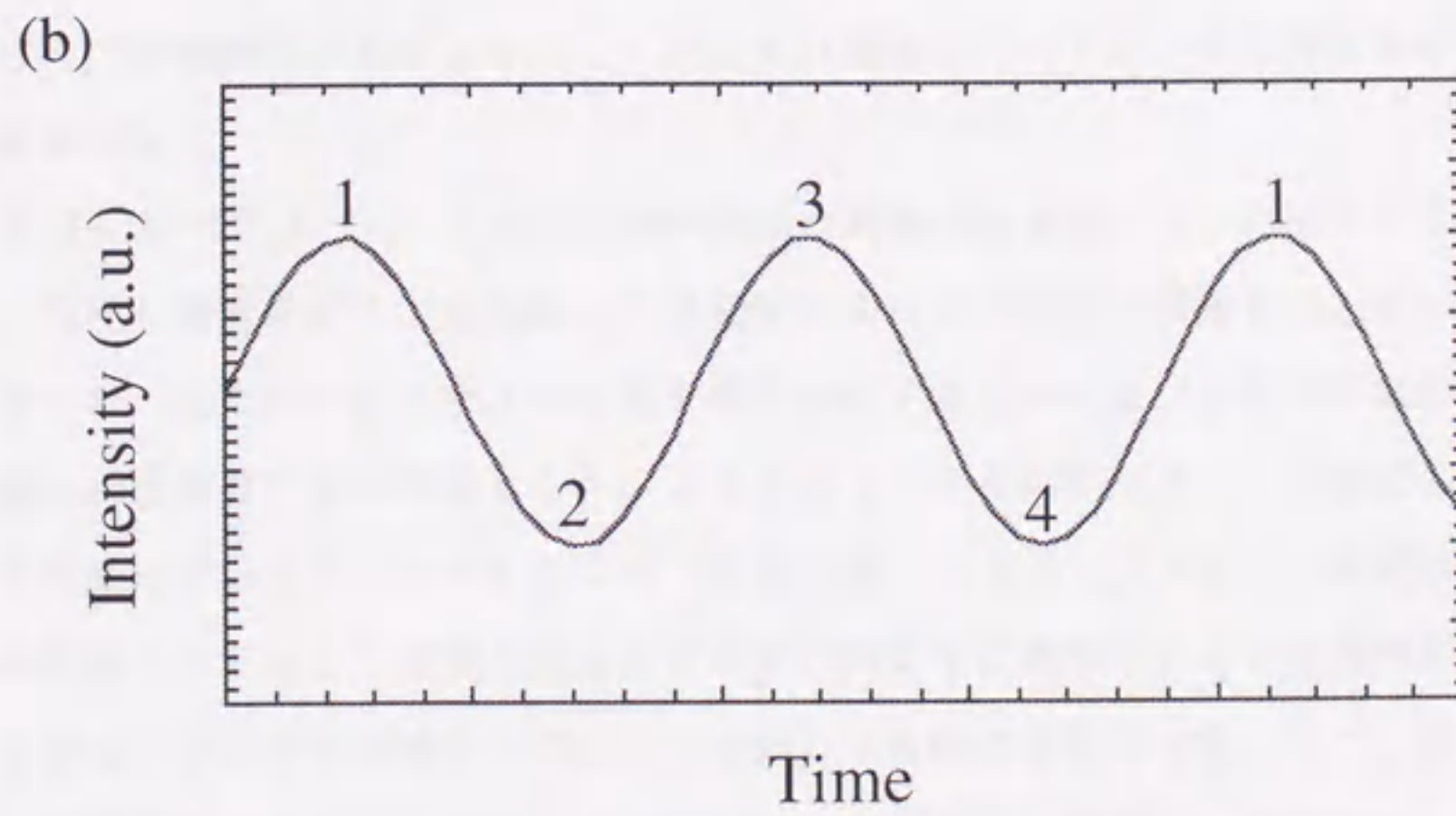
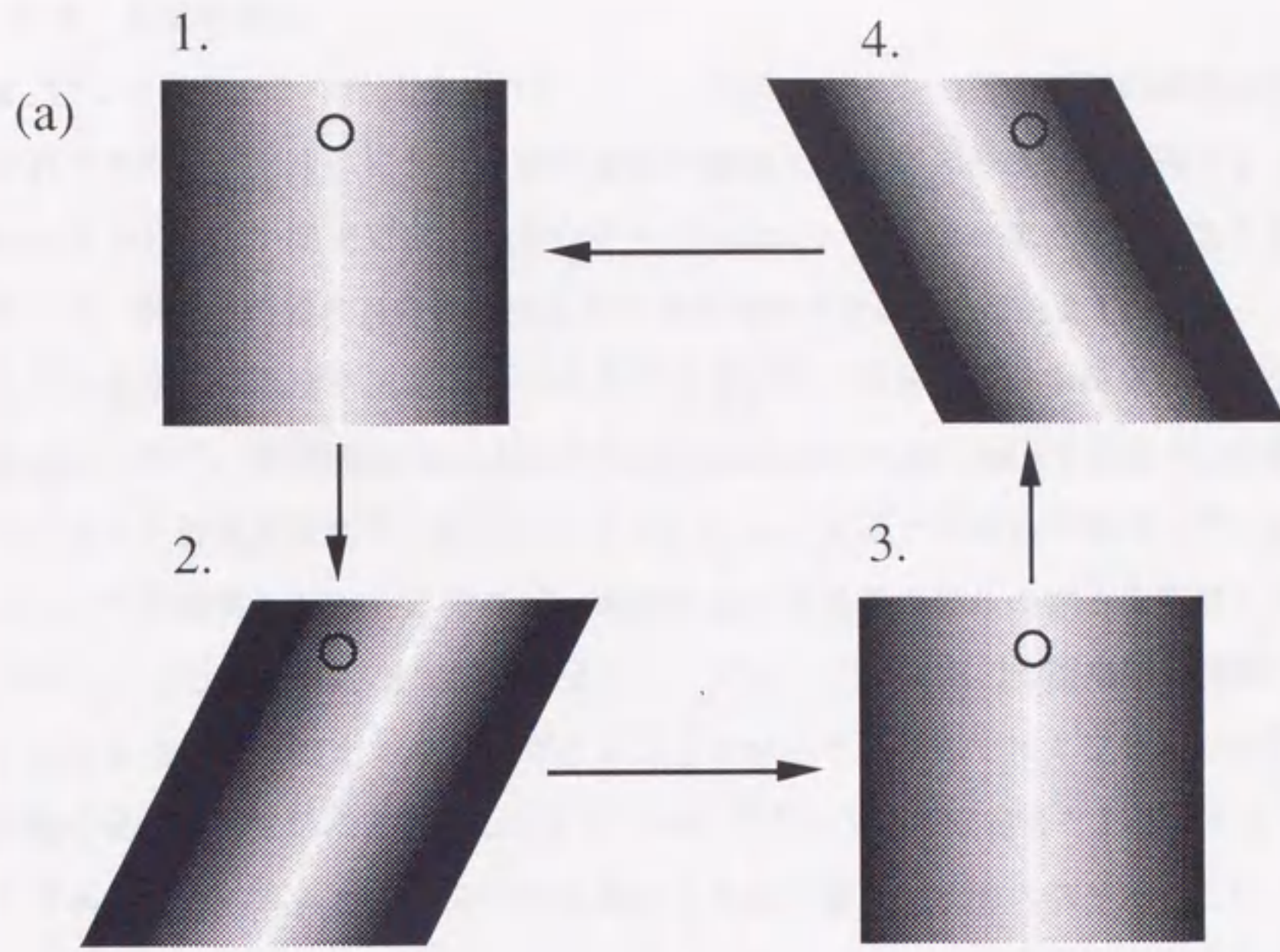


図4-2 (a) ; angle-deflective oscillation の観測. (b) ; 透過光強度の時間変化.

#### 4.1.3 本章の目的

4.1.2で述べたように、液晶のEHCでは空間パターンの遷移過程の研究は活発になされてきたが、対流系における時間振動を観測し、カオスの概念で理解するという観点からはくわしい研究はほとんどなされていない。そこで本章では、液晶のEHCにおいて、乱流への遷移過程におけるカオスを観測することを目的としている。

RB対流系では温度や流速といった流体変数が測定されるが、本研究では流体変数の測定は行わず、Williams domainのangle-deflective oscillationを系のxy面内の1点における透過光強度の時間変化によって4.1.2で述べた方法で観測した。乱流現象についての研究を行おうとすれば、厳密に言えば実際の流れの様子を観測しなければならない。しかし§1.2で述べたように、EHCでは流速の時間空間的変動をパターンの明るさとして捉えることができる。したがって本研究では、定常流の不安定化や初期の乱流を、流れにともなって形成されるパターンの不安定性としてとらえる。

カオスのメカニズムは、微分方程式系や1次元写像を解析的に調べることによって明らかになってきた。しかしコンピュータ・シミュレーションや実験で得られるデータにはさまざまな制限があるので、理論が現実の系にあてはまるかどうかは簡単にはいえない。そこで、理論と実際の数値を結びつける手法が必要となり、現在までにいろいろな手法が提案されている。本研究でも実験で得られた時系列にそれらの手法をあてはめ、周期振動がどのようにしてカオスへ遷移していくか、時系列がカオスかどうかを調べる。

§4.1で述べたように、1次元写像の性質が対流系の実験に見いだされたことによって、現実の物理系が1次元写像と同じ機構によって不規則な現象を示していることがわかった。したがってカオスの本質を明らかにするためには、1次元写像のふるまいを調べれば充分であると考えられるようになり、ノイズやパラメータなどの実験上の制約を受けないコンピュータによる“数値実験”によって、カオスの性質は明らかにされてきた。しかし、現実の系でカオスがどのように現れてくるかも興味のあるところである。そこで本研究ではそのような観点から研究を行う対象として、非平衡開放系の散逸構造のひとつである、液晶のEHCのパターンを選び、そこでのカオスを観測することを目的とした。



## § 4.2 実験

4.1.1で述べたように、対流系においてカオスを観測する場合、アスペクト比の小さな系で実験を行う必要がある。したがって液晶のEHCの場合、セルの厚さが数10  $\mu\text{m}$ 程度なので、数10~数100  $\mu\text{m}$ の大きさの容器に液晶を封入し配向させなければならないが、側壁の不完全性を対流系に影響を与えない程度まで抑えてこの大きさのセルを作ることは大変困難である。本研究では、パターン電極を用いてセル内の液晶の一部にだけ電場が印加されるようにした Free Lateral Boundary Cell (3.2.1参照)によって小アスペクト比の系を実現した。Tsuchiyaらの実験では側壁は rigid であるから<sup>24)</sup>、 $x$ 方向の境界条件が観測結果に与える影響を比較して調べることができる。

本研究のようにパターンがゆっくりと運動する様子を観測する場合、かなりの長時間にわたって測定を行う必要がある。したがって本章の実験でも、DSM用のネマティック液晶 ZLI-1831 (Merck) を用いた (2.2.1参照)。

実験系は図4-3に示す。通常の観察も、angle-deflective oscillation の観測も偏光顕微鏡を用いる。ただしアナライザは使用せず、ポラライザの偏光方向は  $x$  方向である。顕微鏡像をビデオ・カメラで撮影する場合は、カメラ用接眼レンズにビデオ・カメラを取り付けて行う。

この章での angle-deflective oscillation の観測には画像解析を用いなかった。2.2.5で述べたように、画像解析装置のパターンの濃淡に対する分解能は256階調であるが、これは後で述べるフラクタル次元や Lyapunov 指数の計算を行うには充分ではない。したがって、angle-deflective oscillation の観測は次のように行った。まずカメラ用接眼レンズ内の焦点面にピンホールの空いたマスクを取り付け、セルの  $xy$  面内の小領域の像のみが観察できるようにする。そしてさらにこの接眼レンズの先端に光電子増倍管 (Photo Multiplier Tube, PMT) を取り付けることによって、その小領域の像の光の強度を測定することができる。PMTの信号は、フォトン・カウンタを通して AD-converter に入力される。AD-converter は12 bit であるので、フォトン・カウンタの出力信号は光の強さに応じて0~4095の整数値に変換されてパーソナル・コンピュータに読み込まれるが、実際はPMT保護のため、最大で2000程度になるよう光の強度を落として測定を行った。このように、PMTと12 bit AD-converter を用いることによって、フラクタル次元や Lyapunov の計算に対しても充分な測定分解能を

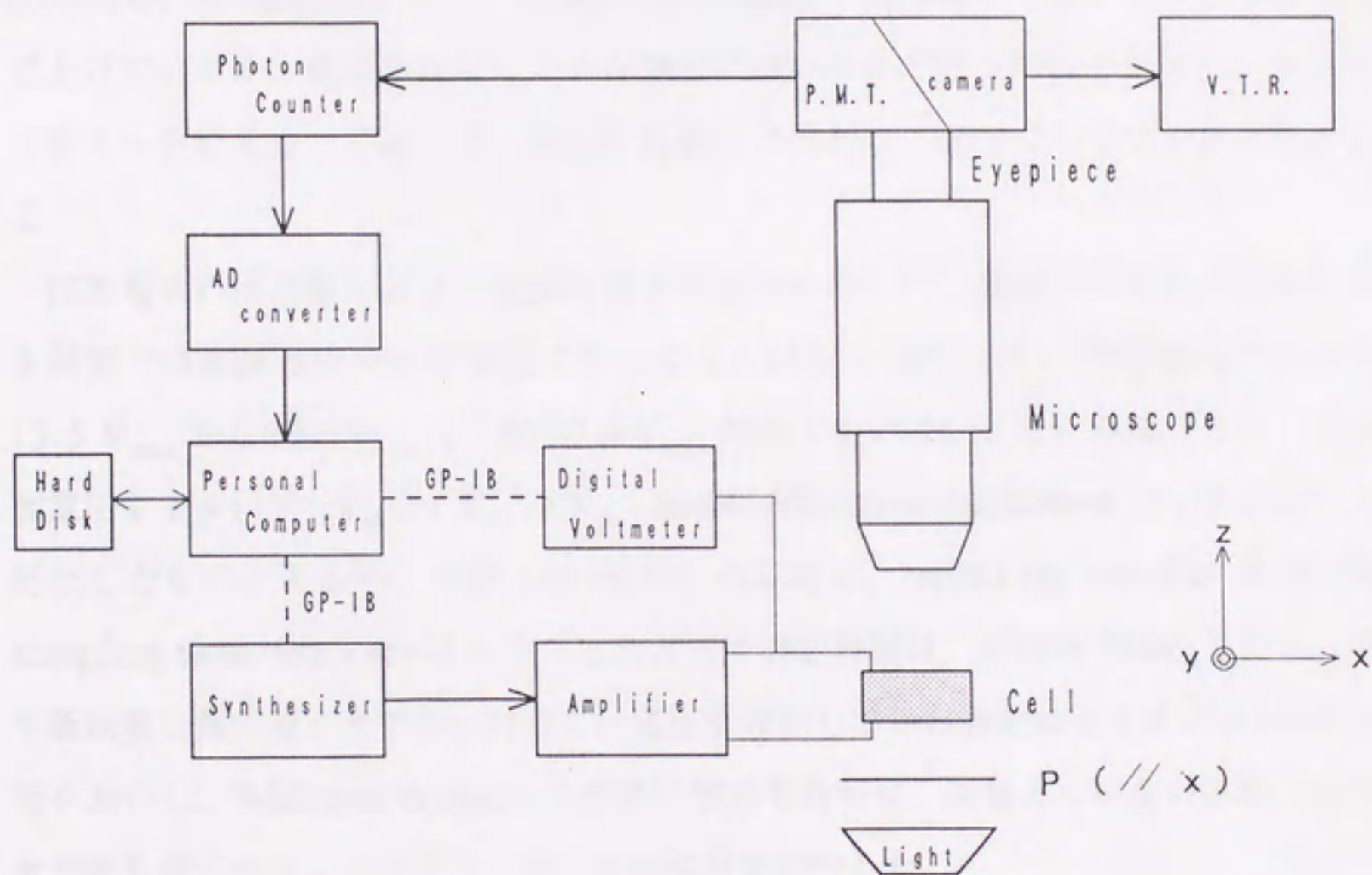


图4-3 实验系.

得ることができた。フォトン・カウンタからは連続的にアナログ信号が送られてくるので、AD-converter に sampling time と sampling number を入力すれば、決まった時間間隔で決まった数だけデジタル信号に変換されてコンピュータに読み込まれる。コンピュータに読み込まれたデータは、ハード・ディスクに落し保存した。

セルへの電場印加は、2.2.3で述べたのと同様に行った。印加電圧の大きさは、digital voltmeter で測定し、GPIBを介してコンピュータに読み取った。

測定は連続50時間以上にわたって行われるので、装置の制御、測定、データの保存などを自動的に行うコンピュータ・プログラムを作成した。あらかじめ、AD-converter の sampling time, sampling number, 電圧は何Vから何Vまで何V間隔で上げていくか、電圧を設定してから測定にはいるまで何分時間をおくか、などをコンピュータに入力しておけば、測定が自動的に行われ、電圧ごとにデータが保存される。

印加電場の周波数によって振動の様子が変わるので<sup>25)</sup>、観測される波形も異なるが、本研究では高調波成分が比較的少なくなる1 kHz に設定した。印加電圧の大きさは13.5 V<sub>rms</sub> から18.5V<sub>rms</sub> まで約70 mV<sub>rms</sub> 間隔で上げていった。外部パラメータは印加電圧を  $\epsilon = (V^2 - V_{th}^2) / V_{th}^2$  ( $V_{th}$ : angle-deflective oscillation のしきい値) と規格化したものとする<sup>26)</sup>。AD-converter の設定は、sampling number を4120、sampling time を0.3 sec とした。したがって測定時間は、20min 36sec となる。系が平衡状態に落ち着くまで待つために、電圧を設定してから測定に入るまで10 min の時間をおいた。Williams domain は虚像に焦点を合わせ、振動していない状態で光の強度が最も強くなるようにピン・ホールの位置を設定した。

測定したデータには、フォトン・カウンタの計数誤差と液晶の熱的ゆらぎが主要因と考えられるノイズが含まれているが、その時間的スケールはパターンの振動の時間的スケールよりはるかに短い。したがって、それぞれを独立なものと考えて、平滑化アルゴリズム (Savitzky-Golay 法とよばれる多項式適合法を平滑化点25点として用いた<sup>27)</sup>。またこれにより両端のデータが12個ずつ捨てられるので、データ数は4096個となった。) によってそのノイズを除去した。以下に示す時系列は、特にことわらない限り平滑化を施した後のものである。

## § 4.3 結果と考察

## 4.3.1 angle-deflective oscillation と準周期崩壊過程

印加電圧が $13.89 V_{\text{rms}}$ になったところで angle-deflective oscillation が起こり（したがって、 $V_{\text{th}} = 13.89\text{V}$ ）、 $\epsilon$ を大きくしていくとともに振動の振幅は徐々に大きくなっていった。 $\epsilon = 0.059$ のときの測定結果を図4-4(a)に、またこの時系列にFFTを施し振動の振幅を表したものを図4-4(b)に示す。時系列は測定開始から4000個分のデータを直線で結んだ。また、以下すべて、時系列も振幅も軸のスケールは変えないものとする。(b)には、1つのピークとその整数倍の位置に高調波によるピークが現れている。このとき生じた振動のモードを $f_1$ とする。

$\epsilon = 0.115$ に達すると第2の振動モード $f_2$ が発生し（図4-5）、周期振動から準周期振動に変わった。 $\epsilon = 0.126$ では、図4-6(a)のように準周期の様子がはっきりと時系列に現れ、(b)では $f_2$ が相対的に大きくなっている。 $f_1, f_2$ 以外のピークは、 $f_1, f_2$ のそれぞれの整数倍およびそれらの和と差の組合せによって得られる振動数、すなわち $f = mf_1 + nf_2$  ( $m, n$ : 整数)で表される振動数のところに現れている。さらに、 $\epsilon = 0.140, 0.147$ と上げていくと準周期振動にわずかに歪みが現れる（図4-7(a), 図4-8(a)）。 $f_1$ は相対的に小さくなるが、 $f_2$ は逆に相対的に大きくなっている。 $\epsilon = 0.158$ になると、周期性はわずかに残るが、振動はかなり複雑になっていて（図4-9(a)）、振幅は $f_1$ と $f_2$ の大きさがほぼ等しくなっている。

$\epsilon = 0.169$ になると、時系列はかなり不規則になってくる（図4-10(a)）。振幅は、 $f_2$ が消滅し $f_1$ もかなり小さくなっており、 $mf_1 + nf_2$ 以外の部分が相対的にかなり大きくなっている（図4-10(b)）。この時系列はカオスになっており、その遷移過程は4.1.1で述べた「準周期崩壊」であると考えられる。

外部パラメータ $\epsilon$ に対して angle-deflective oscillation の振動数 $f_1$ と $f_2$ をプロットすると図4-11のようになった。 $f_1$ と $f_2$ どちらも $\epsilon$ とともに大きくなる。RB対流の実験では、振動数の比 $f_1/f_2$ が引き込みを起こして有理数になる“phase-locked 状態”を経過してからカオスへ至る現象が観測されているが<sup>28,29)</sup>、本研究では観測されなかった。

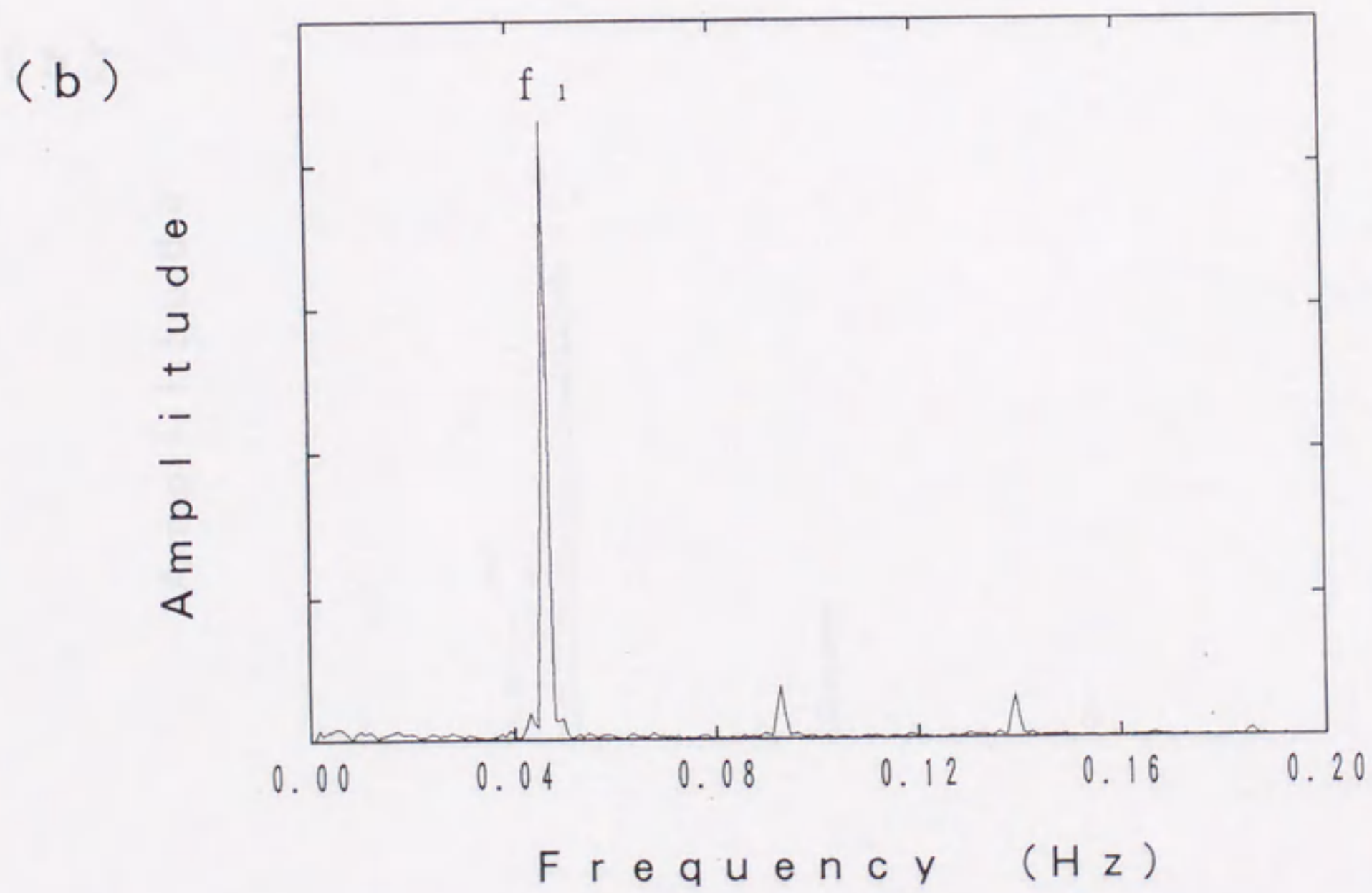
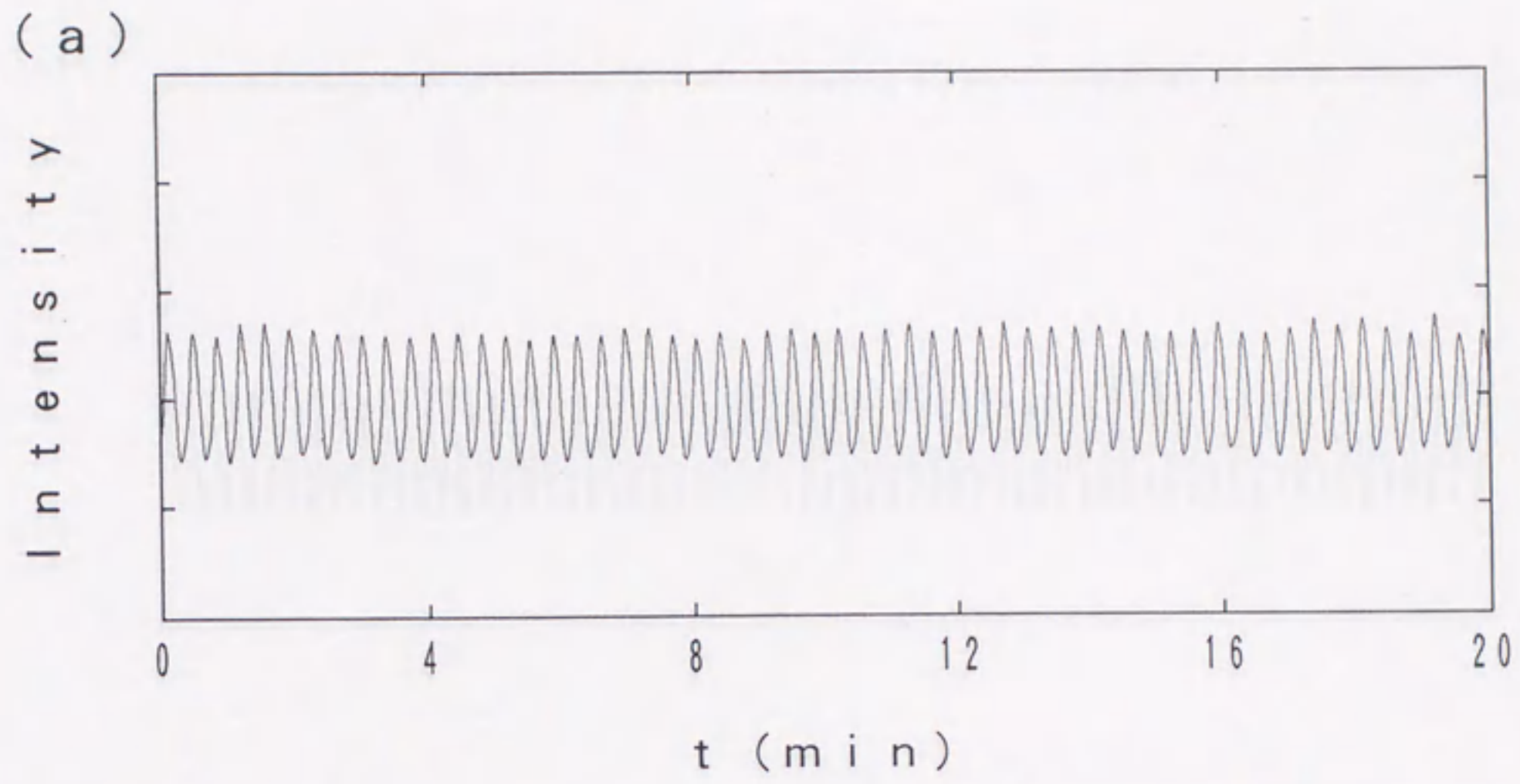


図4-4 周期振動状態.  $\varepsilon = 0.059$ . (a); 時系列. (b); 振動の振幅のスペクトル.

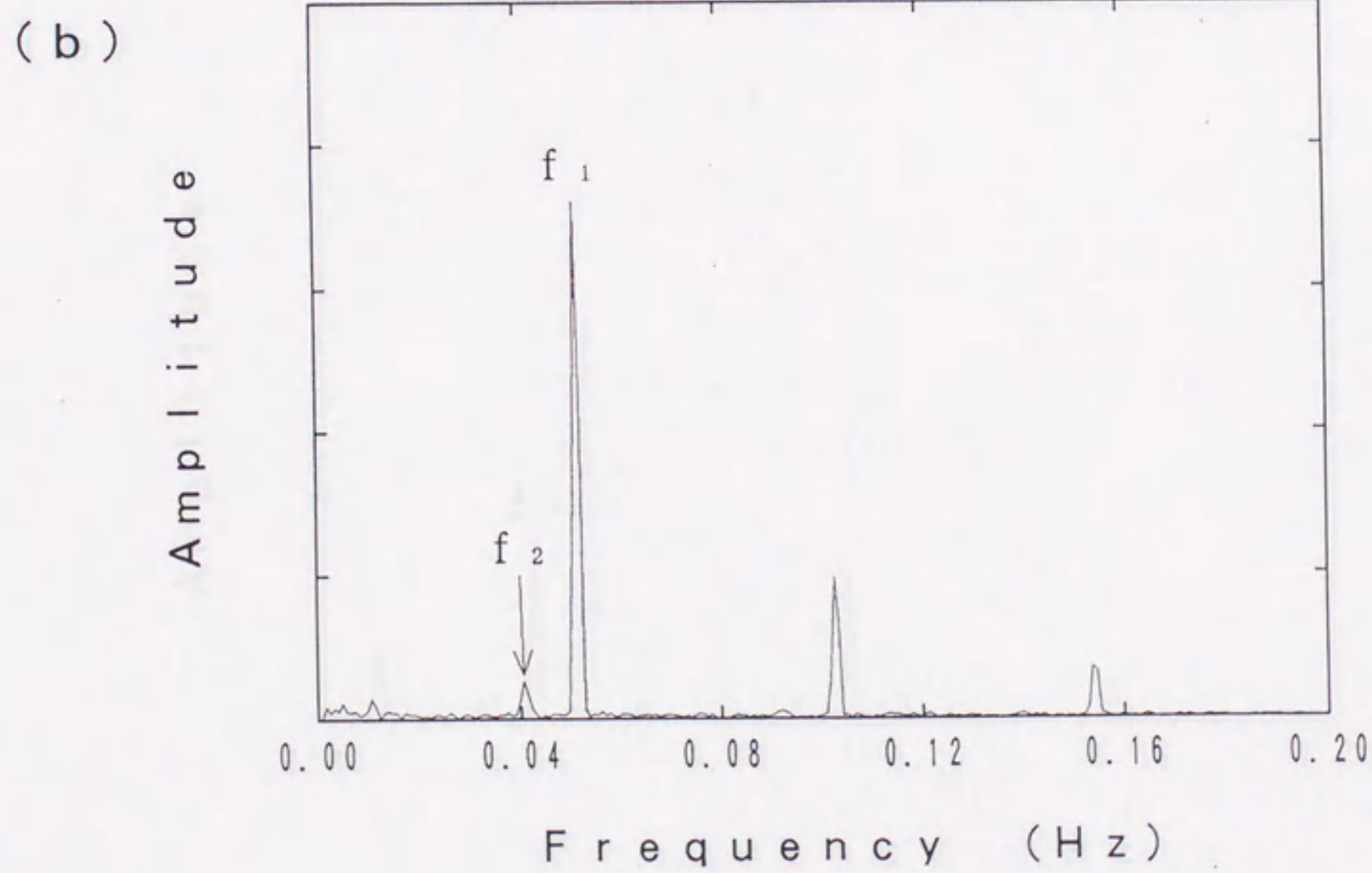
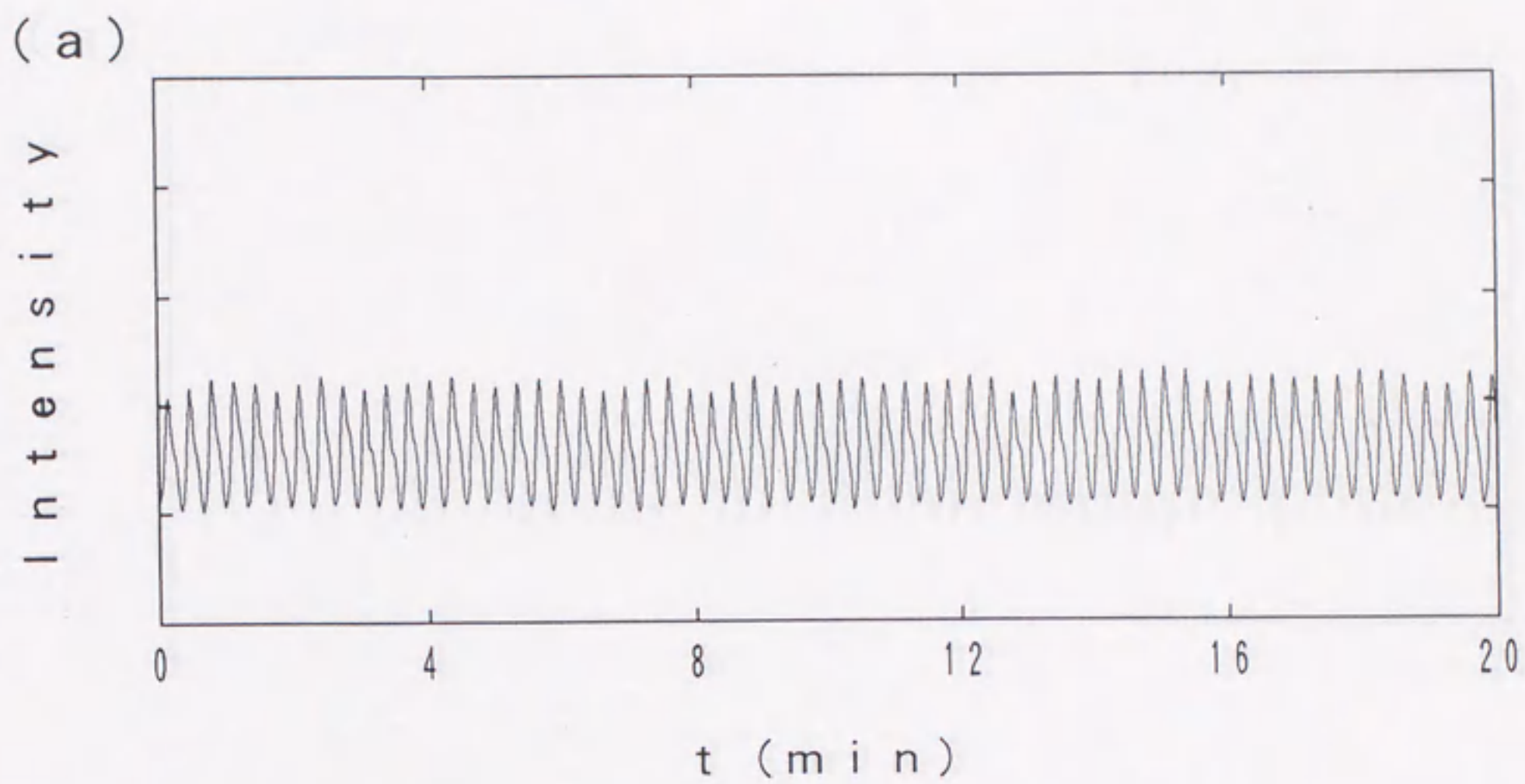


図4-5 準周期振動状態.  $\varepsilon = 0.115$ . (a); 時系列. (b); 振動の振幅のスペクトル.

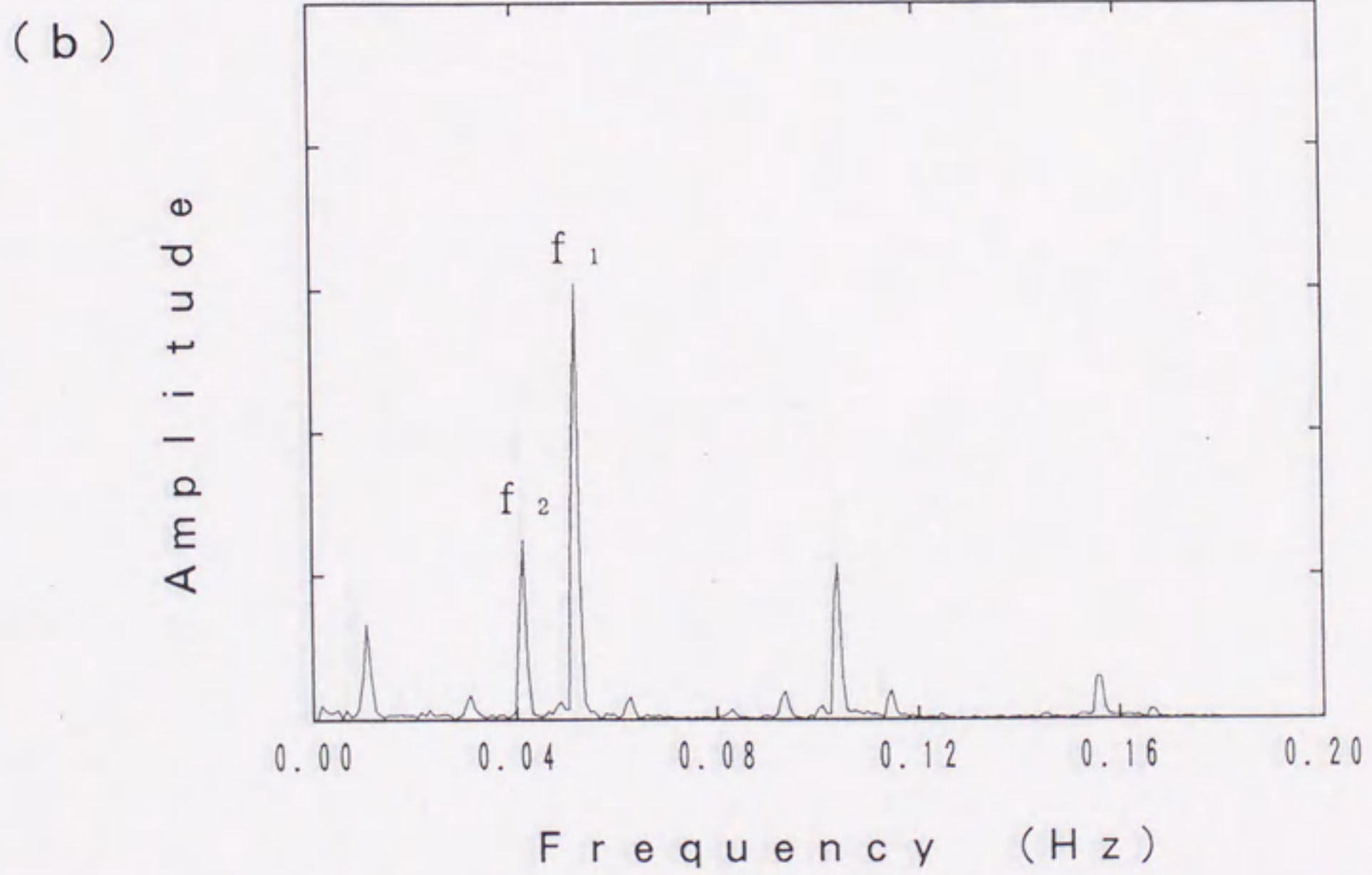
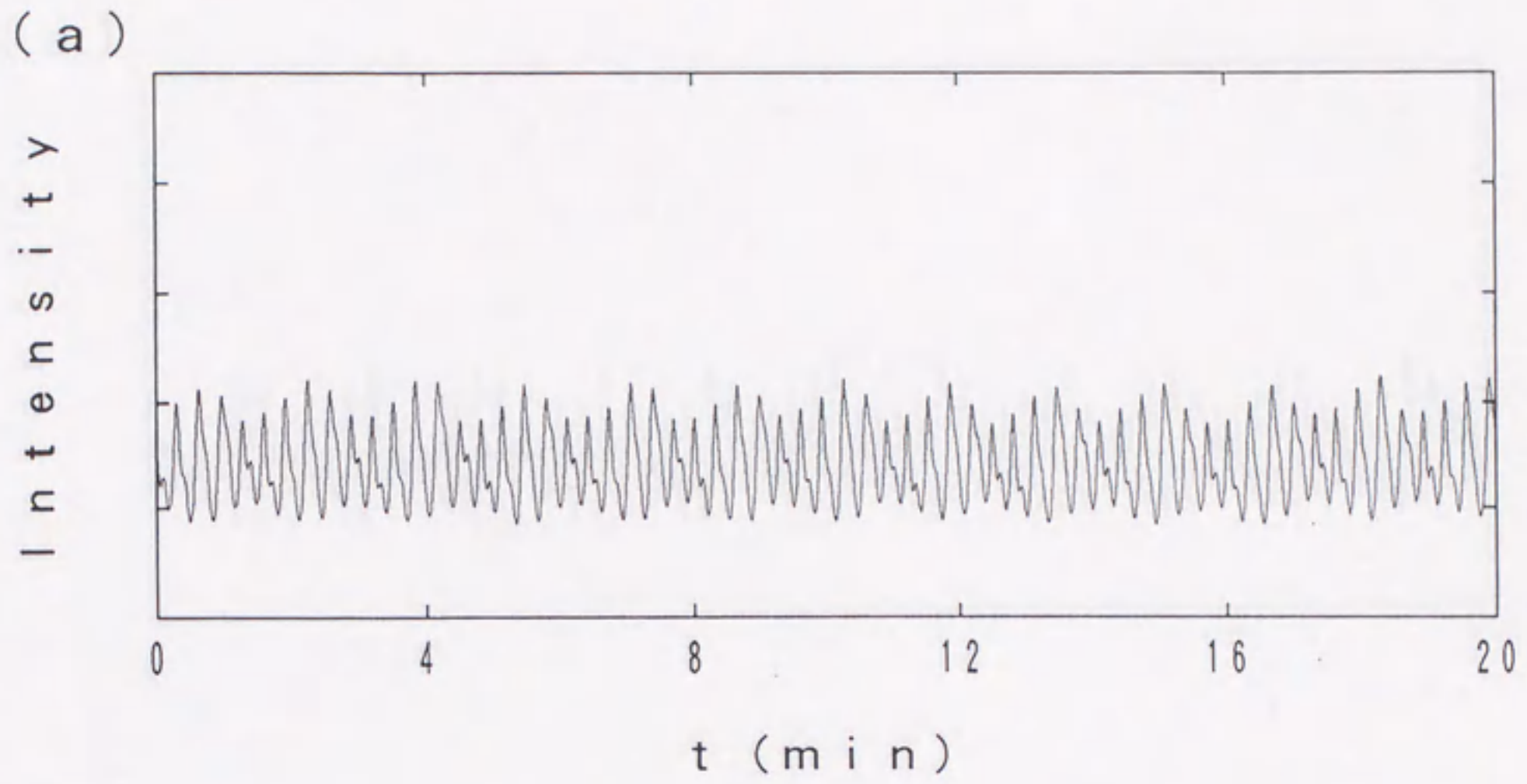


図4-6  $\varepsilon = 0.126$ . (a); 時系列. (b); 振動の振幅のスペクトル.

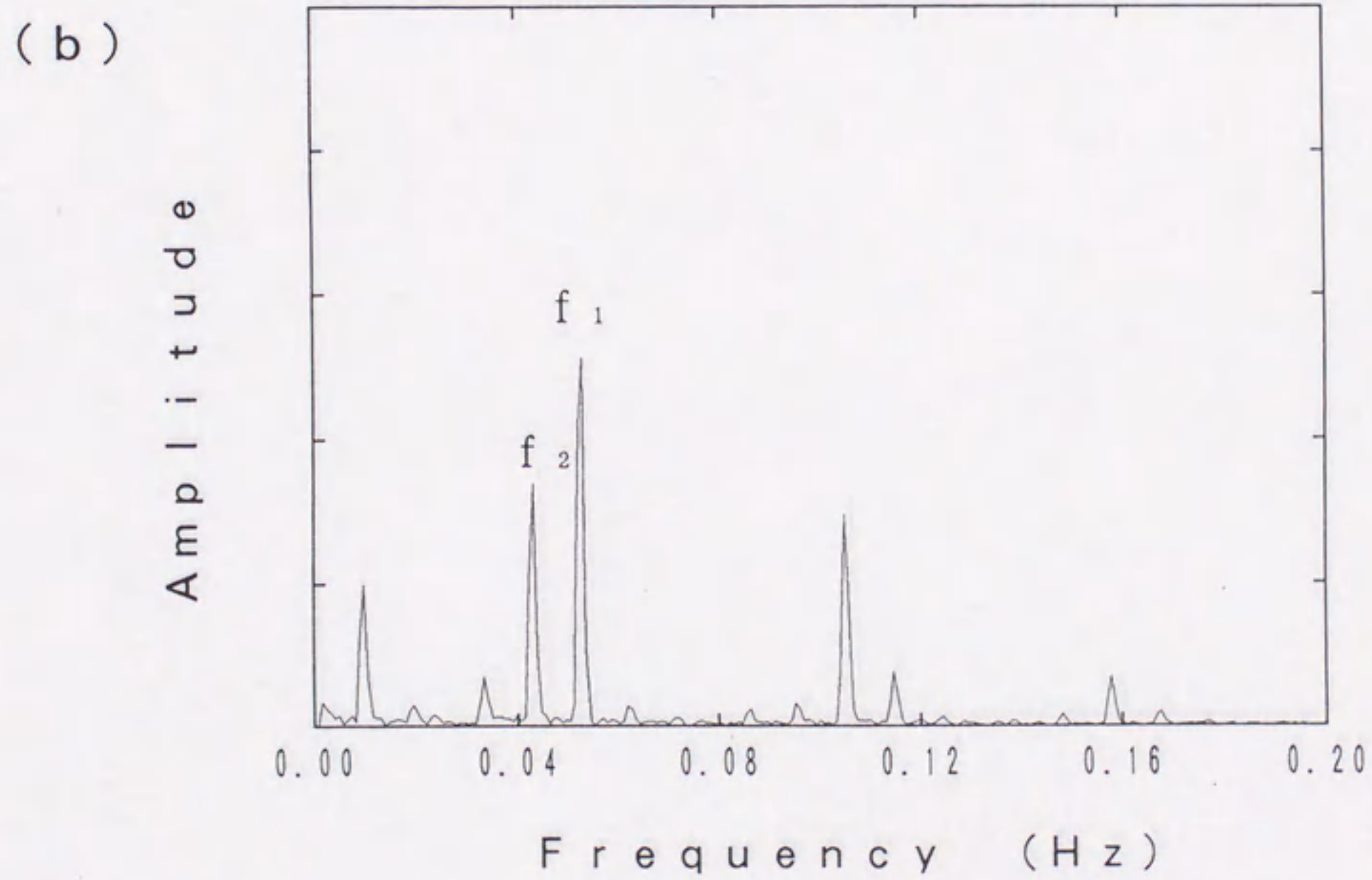
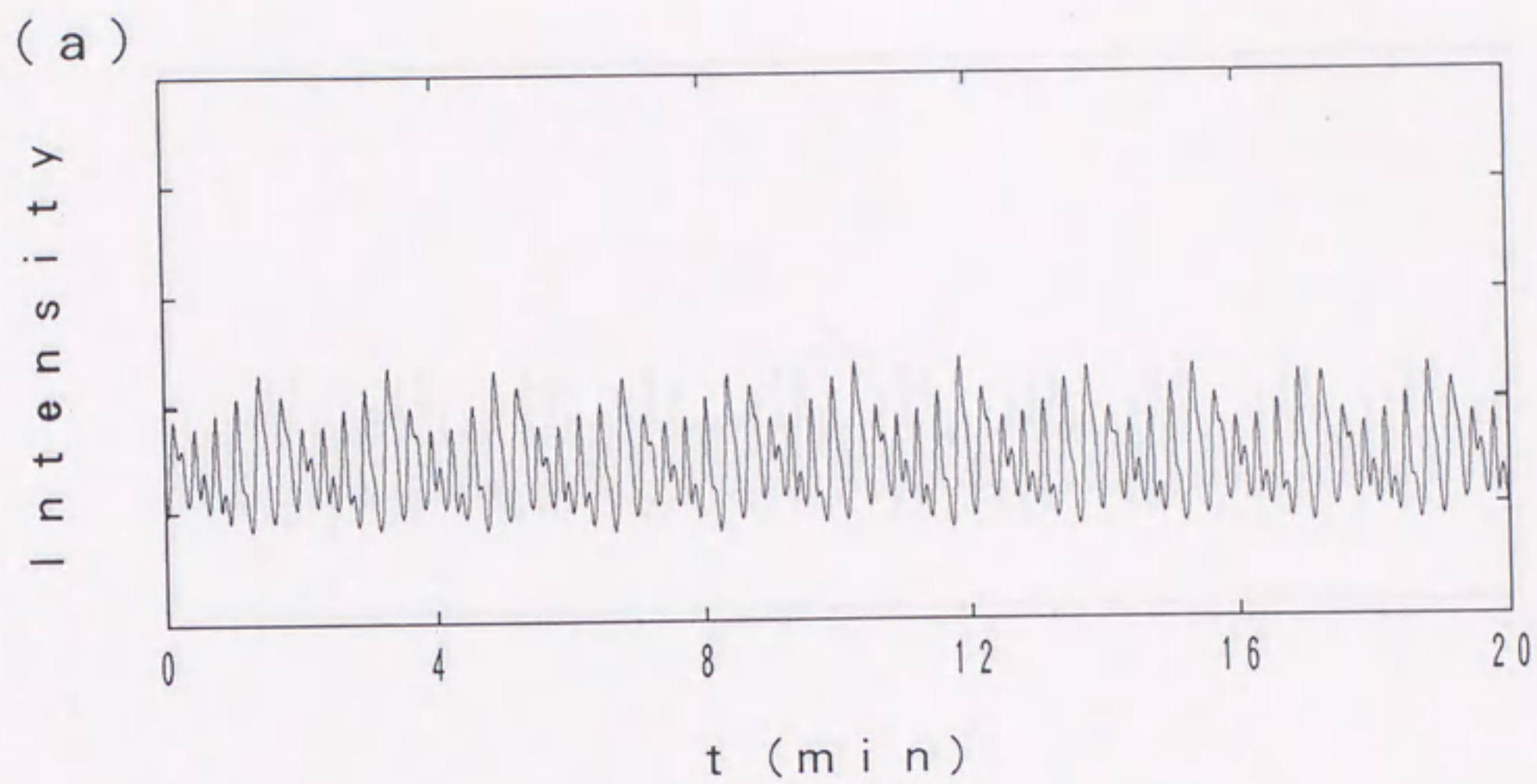


図4-7  $\varepsilon = 0.140$ . (a); 時系列. (b); 振動の振幅のスペクトル.



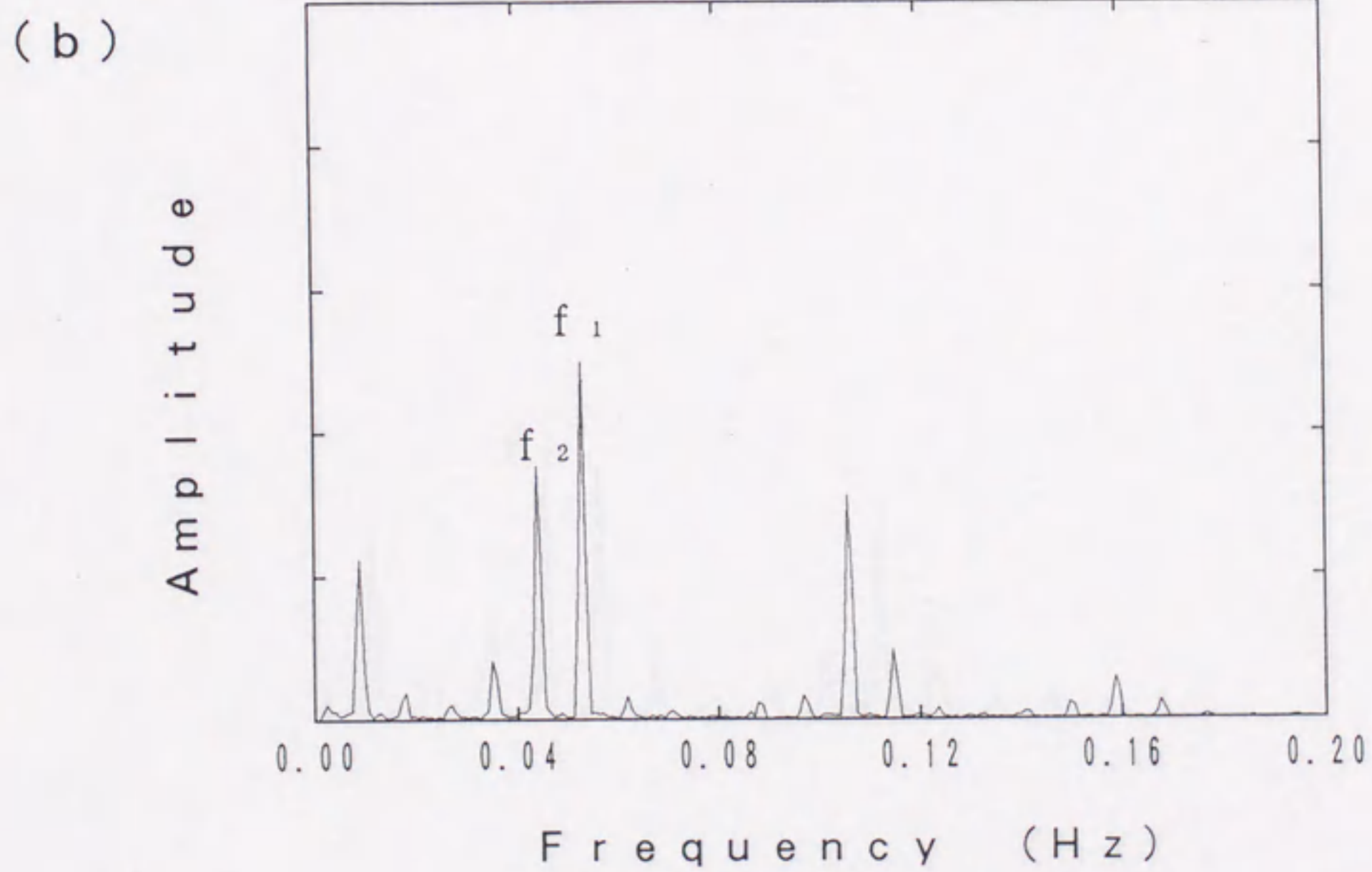
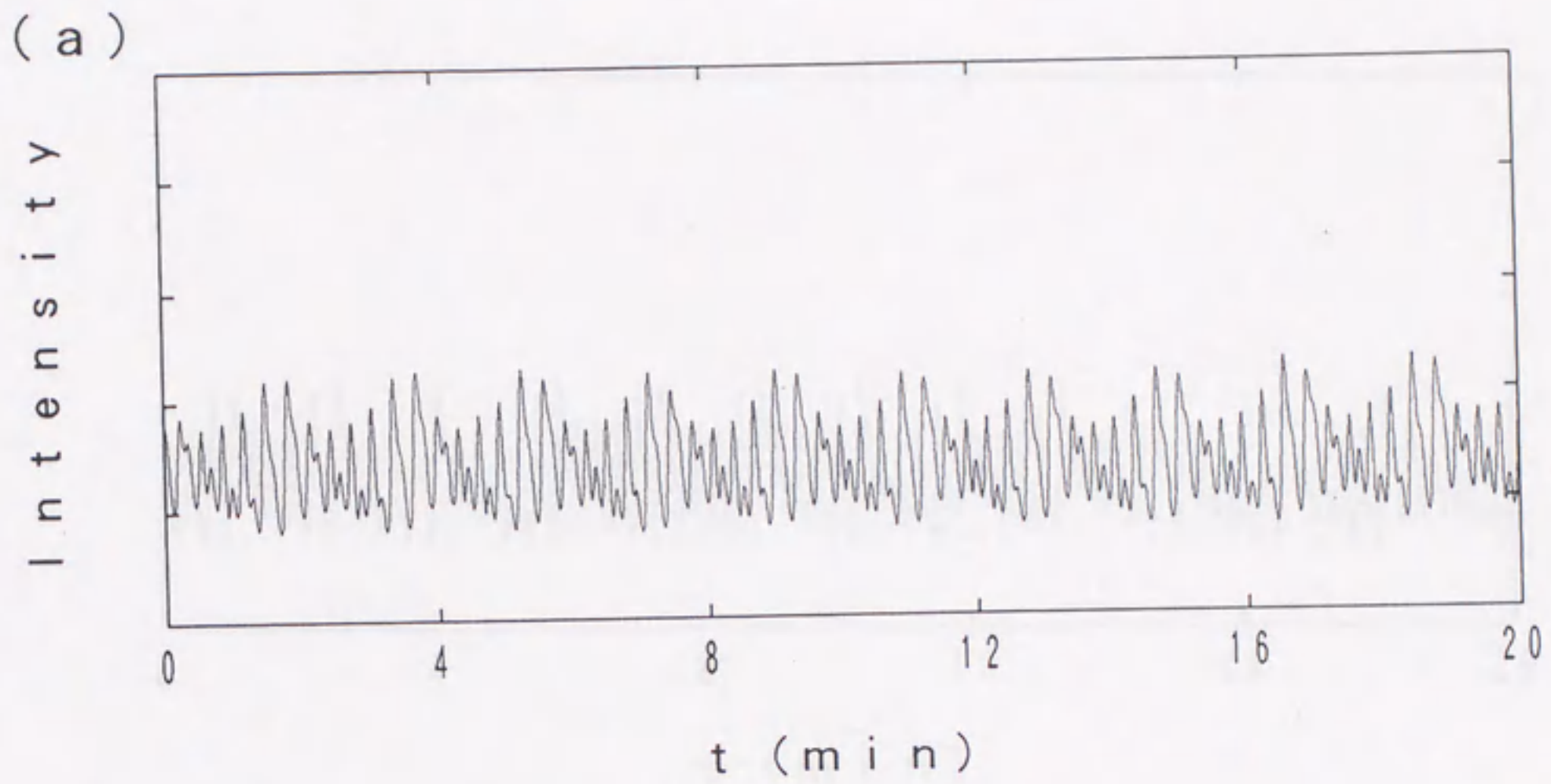
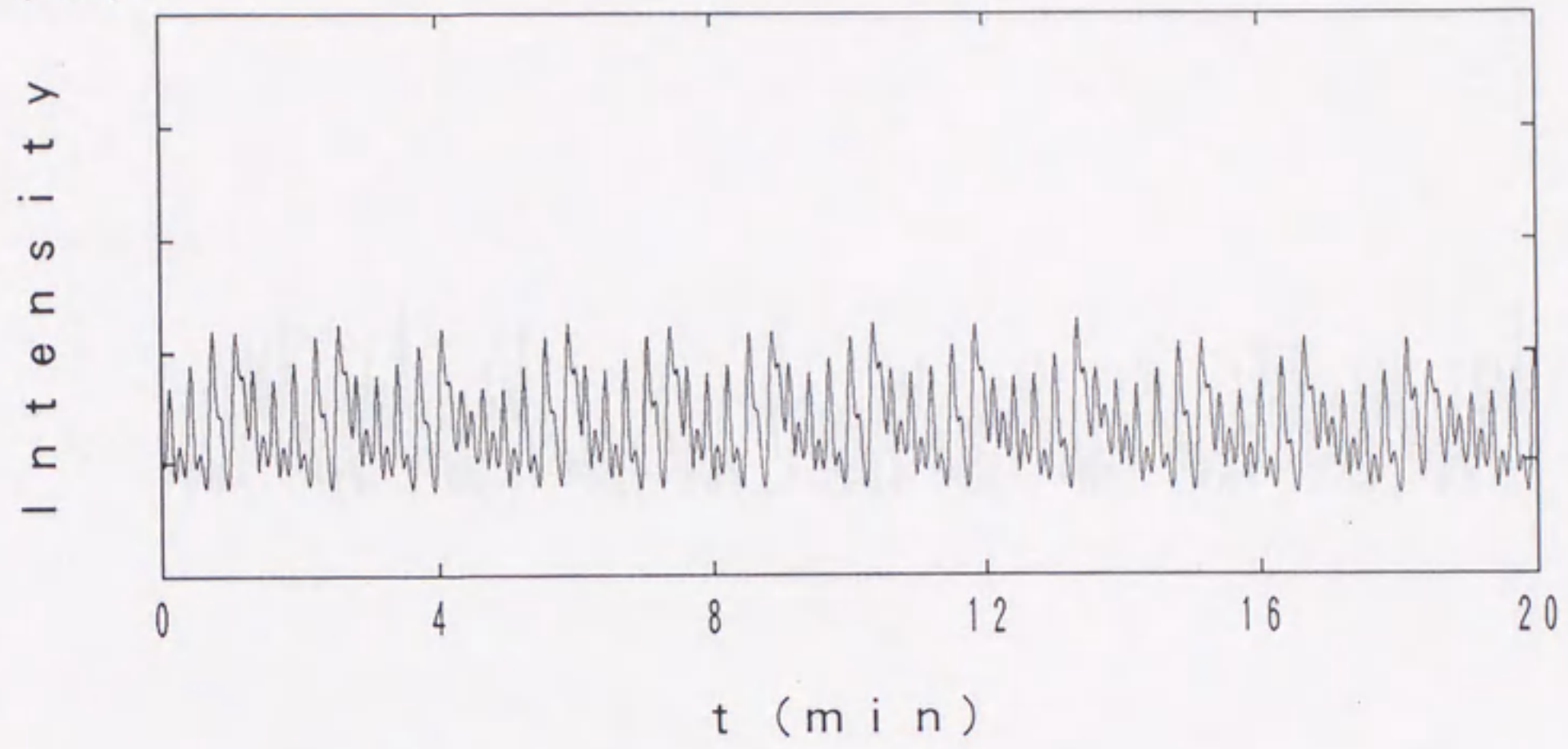


図4-8  $\varepsilon = 0.147$ . (a); 時系列. (b); 振動の振幅のスペクトル.

(a)



(b)

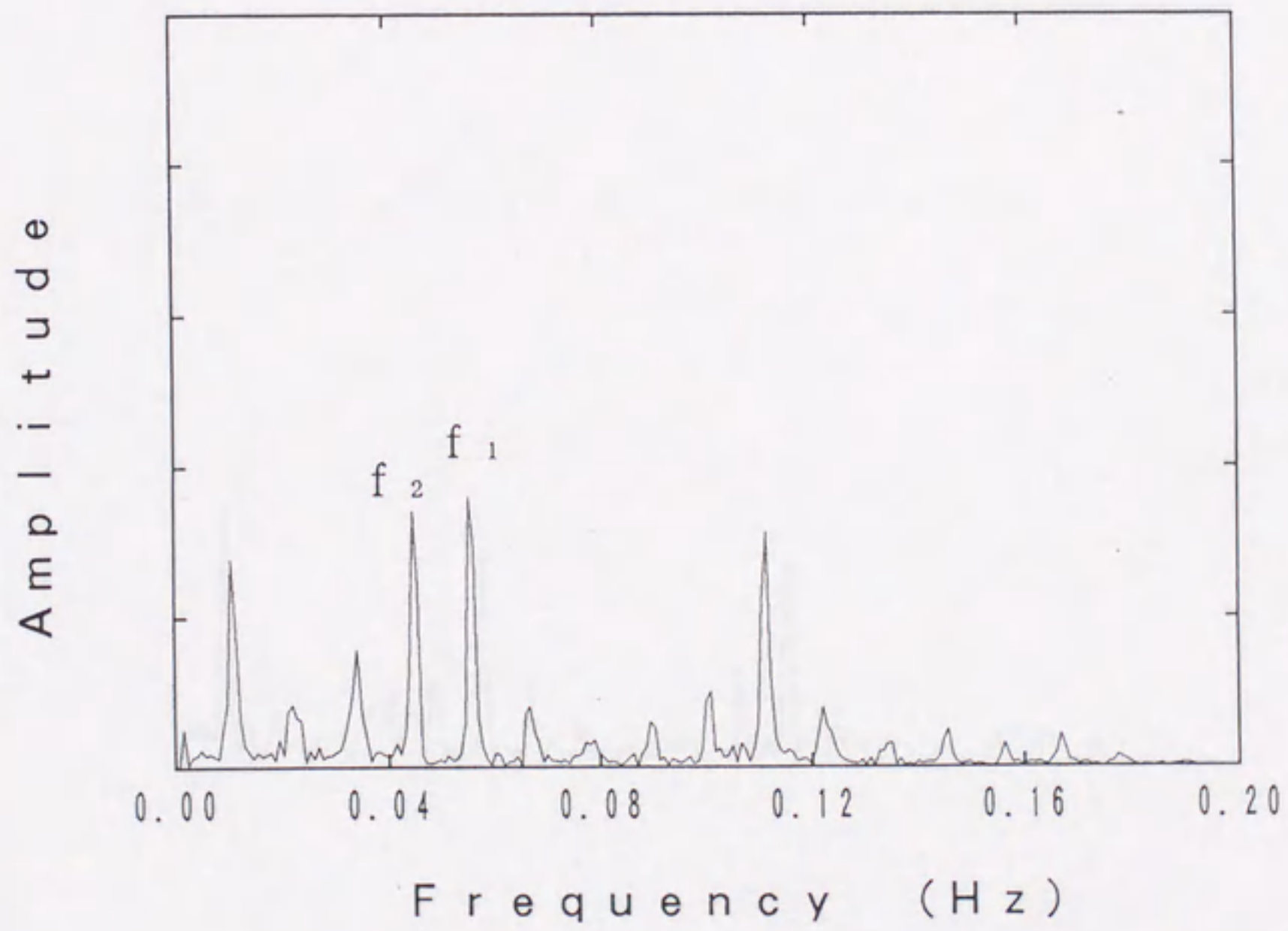
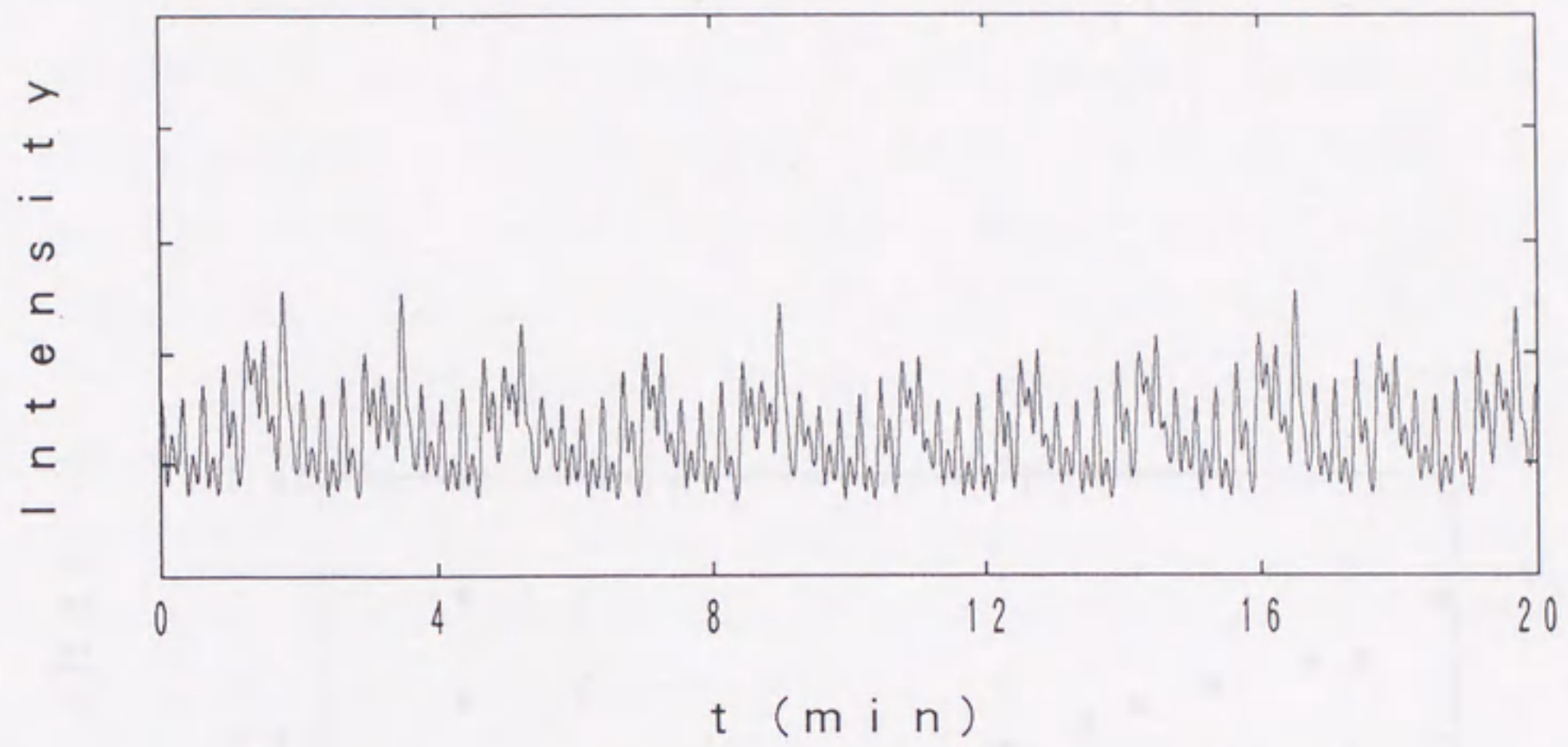


図4-9  $\varepsilon = 0.158$ . (a); 時系列. (b); 振動の振幅のスペクトル.

(a)



(b)

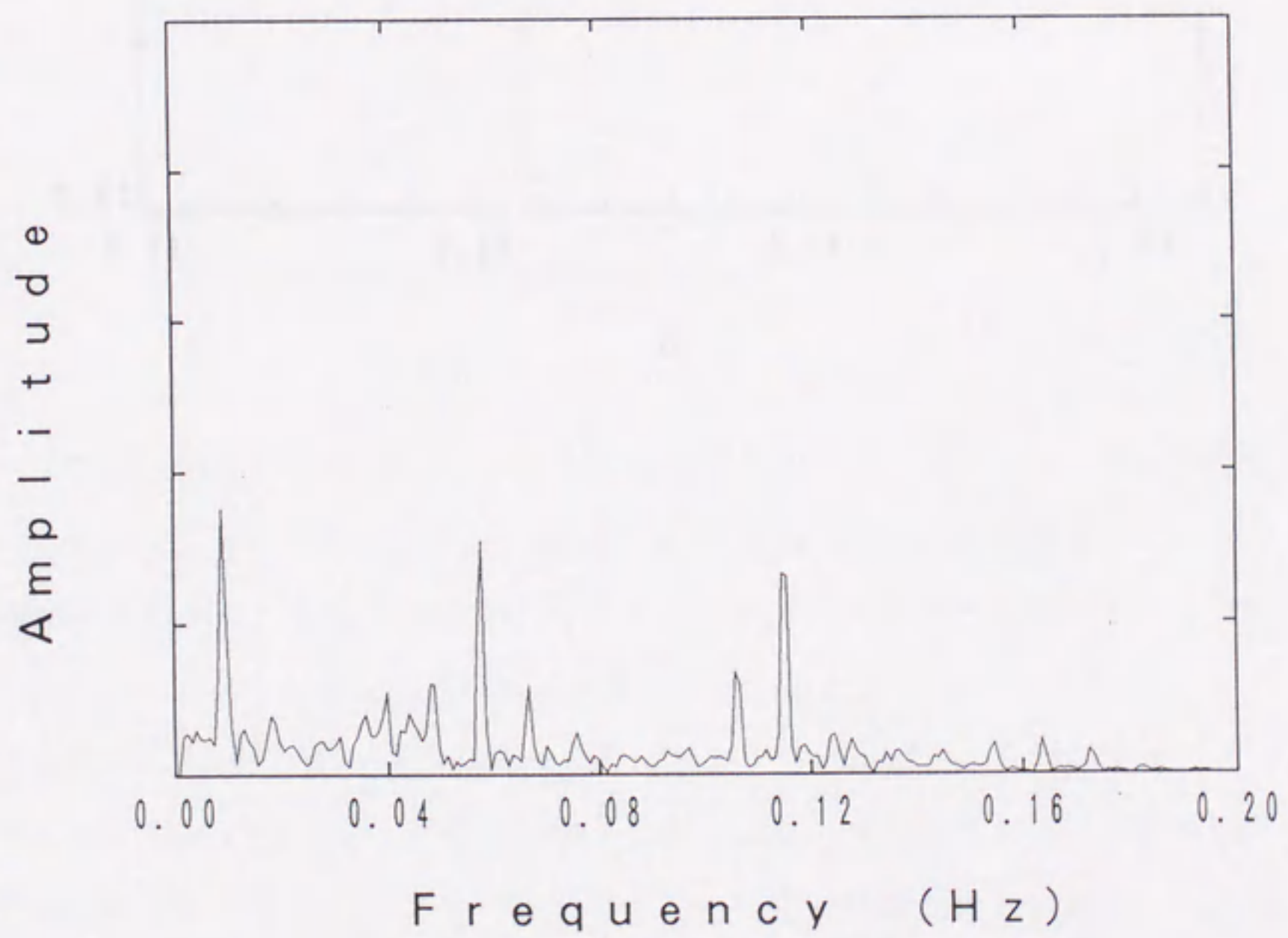


図4-10 カオス振動状態.  $\varepsilon = 0.169$ . (a); 時系列. (b); 振動の振幅のスペクトル.

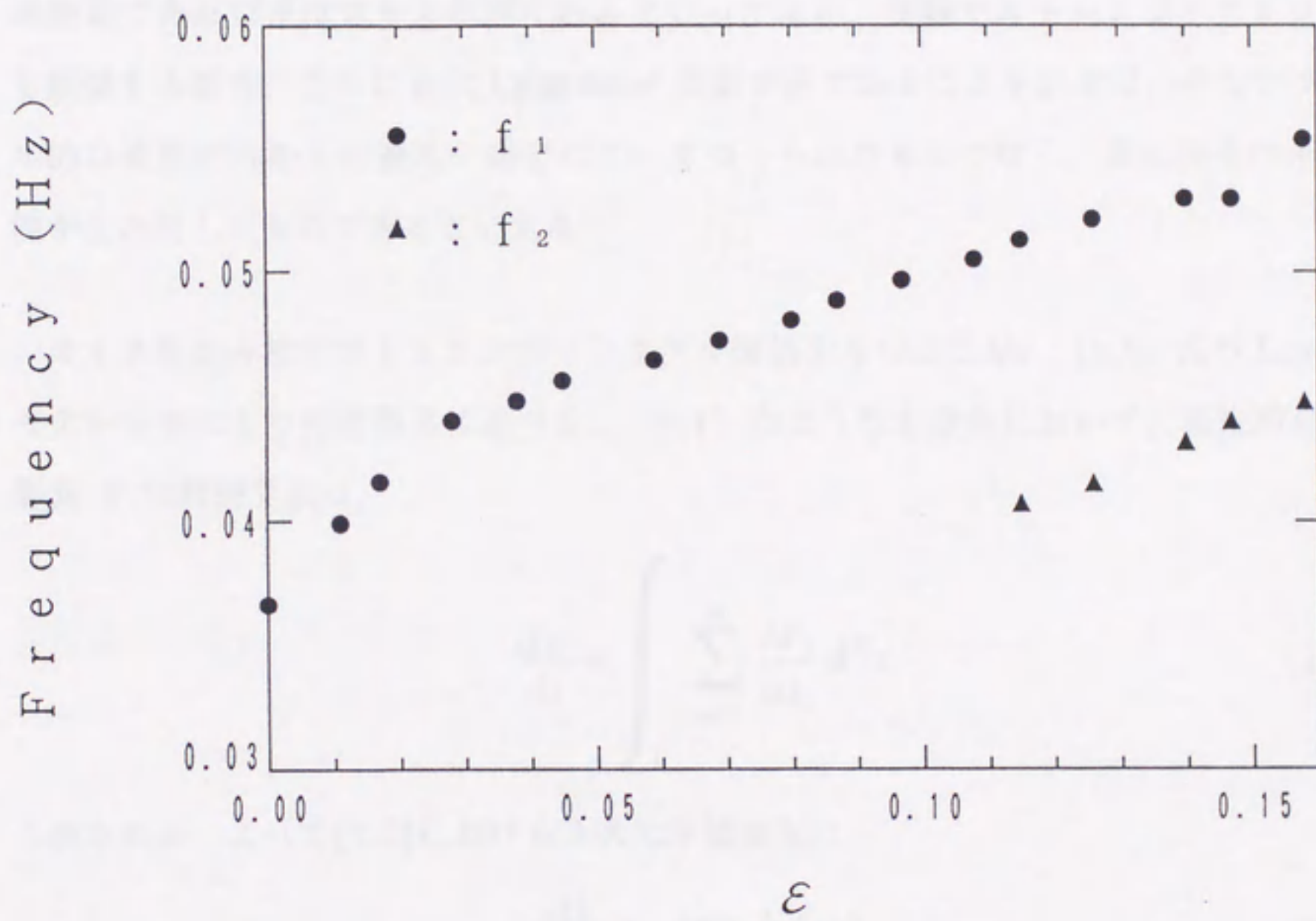


図4-11 振動モード  $f_1, f_2$  の振動数の  $\epsilon$  依存性. ●;  $f_1$ , ▲;  $f_2$ .

4.3.2 相軌道の相関次元<sup>30,31)</sup>

以上見てきたように、 $\varepsilon = 0.115$ で生じた準周期振動が徐々に崩壊し、 $\varepsilon = 0.169$ で非周期的な振動に変わる様子を観測したが、次にその非周期振動が少数自由度の散逸力学系におけるカオスであるか否かをみる。そのために、本節でアトラクタのフラクタル次元を、4.3.3で同じくアトラクタの最大 Lyapunov 指数を測定した時系列より求める。§4.1で述べたように、カオス状態での相空間の軌道であるストレンジ・アトラクタはフラクタル構造をもつので、軌道のフラクタル次元を求め、それが有限非整数であれば系はカオス状態にあるといてよい。実験でストレンジ・アトラクタを観測する場合、さらに最大 Lyapunov 指数が正であることを示せば、そのフラクタル的な軌道が外からの擾乱や雑音によってつくられたものでなく、系に固有の不安定性が生み出したものであるといえる。

カオスを生み出すアトラクタがフラクタル構造をもつことを、(1.5)式の Lorenz モデルを例にとり再度簡単に述べる。(4.1)のような力学系において、相空間の体積要素  $V$  の時間発展は、

$$\frac{dV}{dt} = \int_V \sum_{i=1}^N \frac{\partial F_i}{\partial x_i} d^N x \quad (4.4)$$

と表される。よって(1.2)における3次元体積要素は、

$$\frac{dV}{dt} = -(\gamma + 1 + b) \quad (4.5)$$

に従って変化していくが、 $\gamma, b > 0$ であるので、 $dV/dt < 0$ となる。したがって時間が充分経過すれば、3次元体積要素は体積0の2次元平面へつぶれていくことになる。しかし解の一意性を満たす2次元平面上のアトラクタは、固定点とリミットサイクルしかあり得ないので、この系は非周期振動を生み出せないことになってしまう。

3次元体積が0でありながら非周期振動を生み出すアトラクタとしては、フラクタル図形を考えればよい。例えば、線分を3等分し、まん中を取り除くという単純な操作を無限回繰り返してできるカントール集合<sup>32)</sup>は、その長さは0であるが、固定点とは異なる自己相似で複雑な図形である。3次元相空間においても同様に考え、3次元体積を0にする過程を、体積要素をつぶして平面にすることではなく、stretching と

folding を単純に無限回繰り返すことによって自己相似な入れ子構造をつくることと考えるのである。

そしてそのようなフラクタル図形は、フラクタル次元によって特徴づけられる。カントール集合のフラクタル次元は、約0.631という非整数の値をとるが、これは、点より複雑であるが直線ほど密ではないというその特徴を表している。Lorenz モデルのアトラクタも2.06というフラクタル次元をもつことが知られており、平面と立体の間であり、複雑で自己相似なフラクタル図形がその非周期振動を生み出すメカニズムであることを示している。そしてこのようなフラクタル構造をもったアトラクタを、ストレンジ・アトラクタとよぶ。

このように、観測された非周期振動がカオスであるか否かをみるためには、相空間の軌道のフラクタル性を調べる。ところが、本研究も含めて実験で得られる変数はたいていの場合1つである。したがって、その1変数から相空間の軌道を再構成しなければならないが、そのための手法として次のような「埋込み」とよばれるものがある<sup>33)</sup>。観測時系列  $\{x(t_j) \mid t_j = j\Delta t, j = 1, 2, \dots, N\}$  ( $\Delta t$ : sampling time,  $N$ : sampling number) から時間遅れ  $\tau (= m\Delta t, m$  は自然数) を用いて、次のようにして  $d$  次元相空間の軌道点  $\mathbf{x}_i$  を構成する。

$$\mathbf{x}_i = (x(t_i), x(t_i + \tau), \dots, x(t_i + (d-1)\tau)) \quad (4.6)$$

$$(i = 1, 2, \dots, M).$$

ただし  $N \geq M + d - 1$  で、 $d$  は埋込み次元とよばれる。

このように埋込みによって再構成された相空間の軌道に対して、P. Grassberger と I. Procaccia<sup>34)</sup>によって提案された手法を用いてそのフラクタル次元を求める。ただし、フラクタル次元にはその定義の違いによっていくつかの種類があるが、この手法は最も容易に計算できる相関次元を求めるものである。まず次のように定義された相関関数を計算する。

$$C(r) = \lim_{M \rightarrow \infty} \frac{1}{M^2} \sum_{i,j=1}^M H(r - \|\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_j\|). \quad (4.7)$$

ただし、 $H$  は Heavyside 関数 ( $u \leq 0$  のとき  $H(u) = 0$ ,  $u > 0$  のとき  $H(u) = 1$ ) で、2点間の距離は最大ノルム ( $\mathbf{u} = (u_1, u_2, \dots, u_l, \dots, u_d)$ ,  $\mathbf{v} = (v_1, v_2, \dots, v_l, \dots, v_d)$ ) に対して、 $\|\mathbf{u} - \mathbf{v}\| = \max\{|u_l - v_l|, 1 \leq l \leq d\}$  をとる。すなわち

Heavyside 関数の和の部分は、“距離が  $r$  より小さい点のペア  $(i, j)$  の数”を表わす。この相関関数が  $r$  のべき乗に比例するとき、そのべき指数  $\nu$  すなわち、

$$\nu \sim \frac{\log C(r)}{\log r} \quad (4.8)$$

を相関次元という。

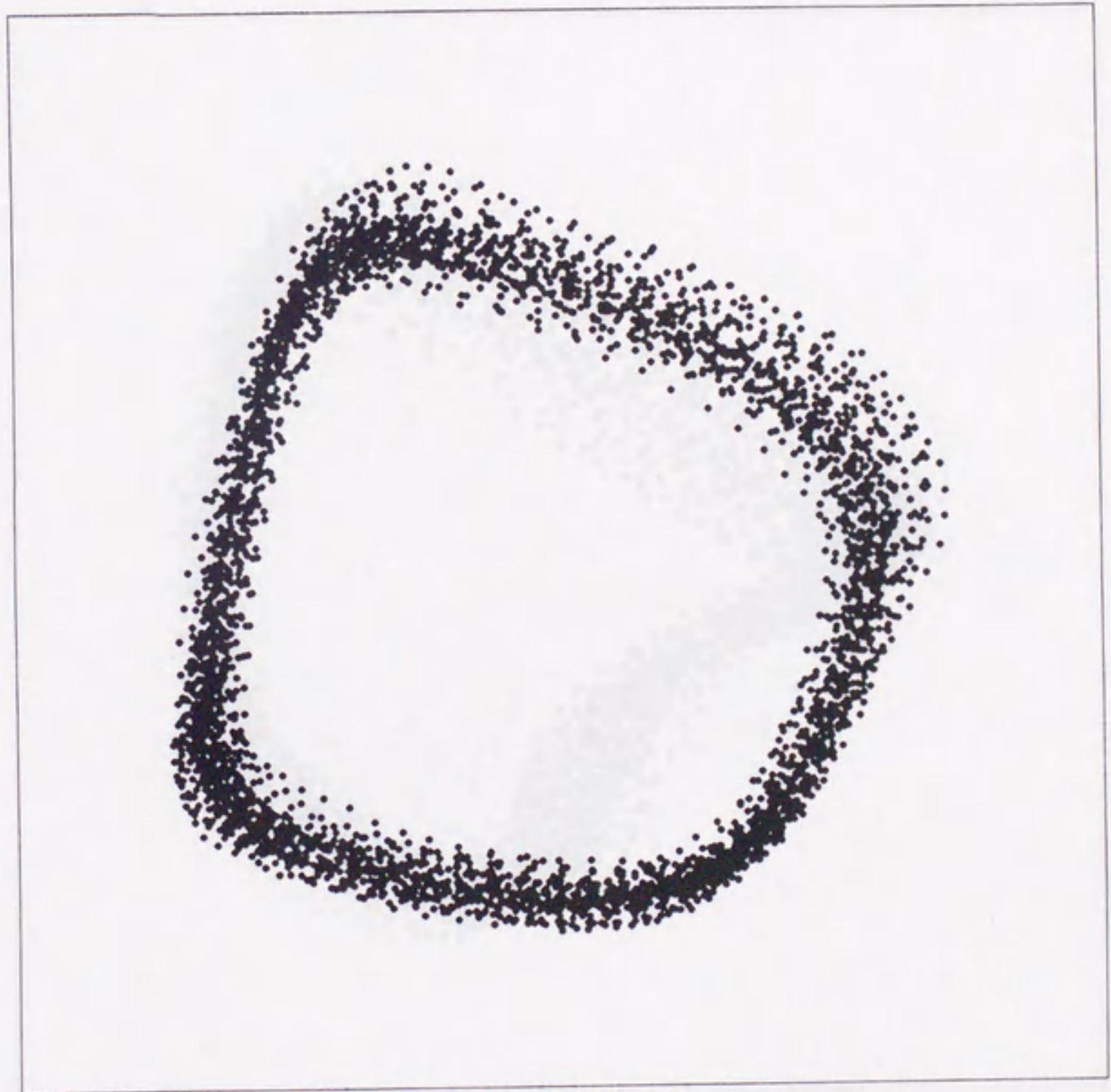
R B対流のように、そのふるまいが速度場のような場の量によって表現される系では、相空間は無次元空間となる。本研究の場合も、実際はパターン上の光の強度という場の量によって記述されるべきなので、やはり相空間の次元は無次元となる。しかし系が少数自由度カオスの状態にあれば、アトラクタは有限次元の部分空間をなしている。また一般に、 $n$ 次元空間では  $n$ より小さな次元の物体を識別できる（3次元空間の“線”は、2次元空間に写影してもやはり“線”である）ことから、アトラクタの次元を判別するには、アトラクタより次元の大きい空間を考えれば充分である。したがって相関次元を求める場合も、埋込み次元  $d$  を上げていきながら  $\nu$  を計算し、飽和する  $\nu$  の値を正しい相関次元とする。

まず初めに、本研究の時系列から埋込みによって再構成された相空間の軌道 ( $x_i = (x(i), y(i))$ ) を図4-12、図4-13に示す。時間遅れは、周期  $T_1 = 1/f_1$  に対して、 $\tau = T_1/4$ とした。図4-12は2次元相空間の軌道を、図4-13の(a)と(b)は3次元相空間の軌道をそれぞれ  $xy$  平面と  $xz$  平面に射影した図を表わす。(a)は周期振動状態の2次元相軌道で、リミットサイクルが現れている。(b)から(d)にかけて、 $\varepsilon$  を大きくしていくとともに、軌道が複雑になっていく様子を示している。カオス状態 ( $\varepsilon = 0.169$ ) での3次元相軌道 (図4-13) は、複雑ではあるが特徴的な図形が現れている。

次に、 $\varepsilon = 0.169$ の時系列から再構成した軌道から相関次元を計算した。その結果、図4-14に示すように  $\nu = 2.6$ という値を得た。これは、この非周期振動が少数自由度の散逸力学系におけるカオスであることを示唆している。図4-14(b)の (■) は、乱数でつくった時系列に同様の計算を施したものである。この場合は点が相空間全体に散らばっているため、(計算誤差の範囲内で)  $\nu = d$  となっており、カオスと“ランダム”の違いを表している。また、(▲) は十分に発達した乱流状態に相当する  $\varepsilon = 0.789$ の時系列から計算したものである。 $d = 10$ まででは  $\nu$  は飽和していないが、 $\varepsilon = 0.169$ の場合よりも高次元のカオスになっていると考えられる。

(a)

$y(i)$

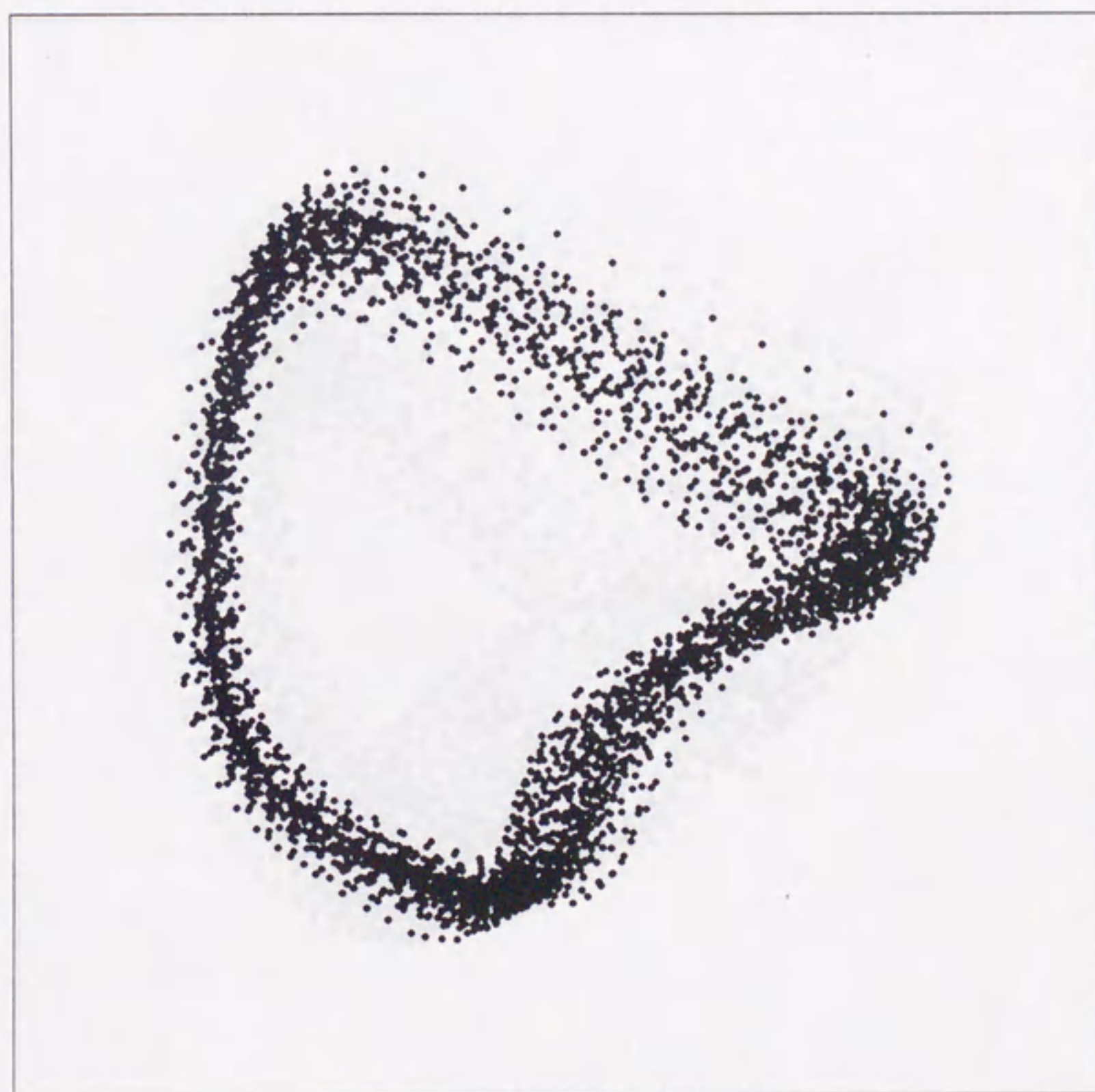


$x(i)$



(b)

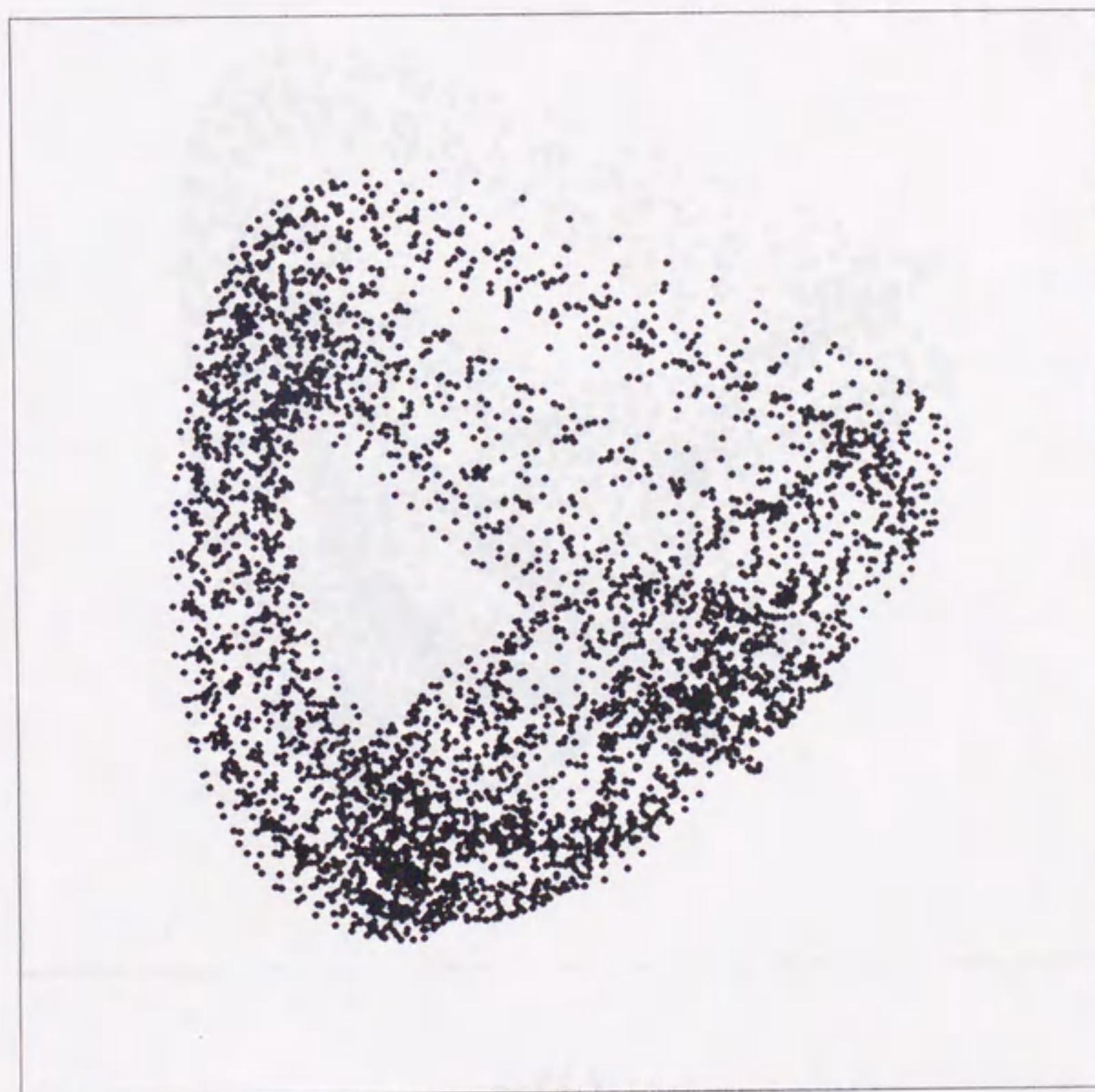
$y(i)$



$x(i)$

(c)

$y(i)$



$x(i)$

(d)

 $y(i)$  $x(i)$ 

図4-12 埋込みによる2次元相空間の軌道. (a);  $\varepsilon = 0.059$ . (b);  $\varepsilon = 0.115$ . (c);  $\varepsilon = 0.126$ . (d);  $\varepsilon = 0.147$ .

(a)

$y(i)$



$x(i)$

(b)

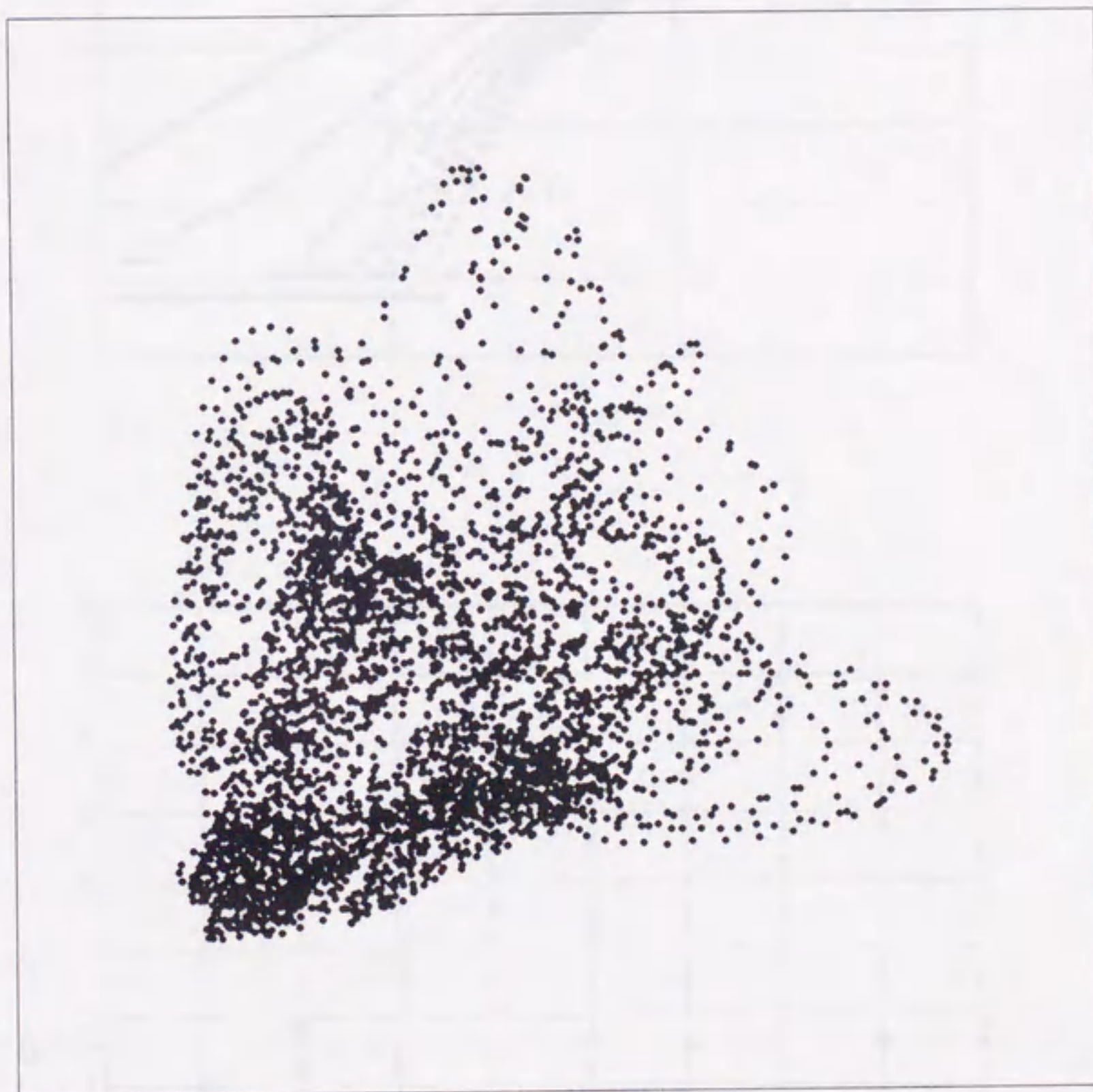
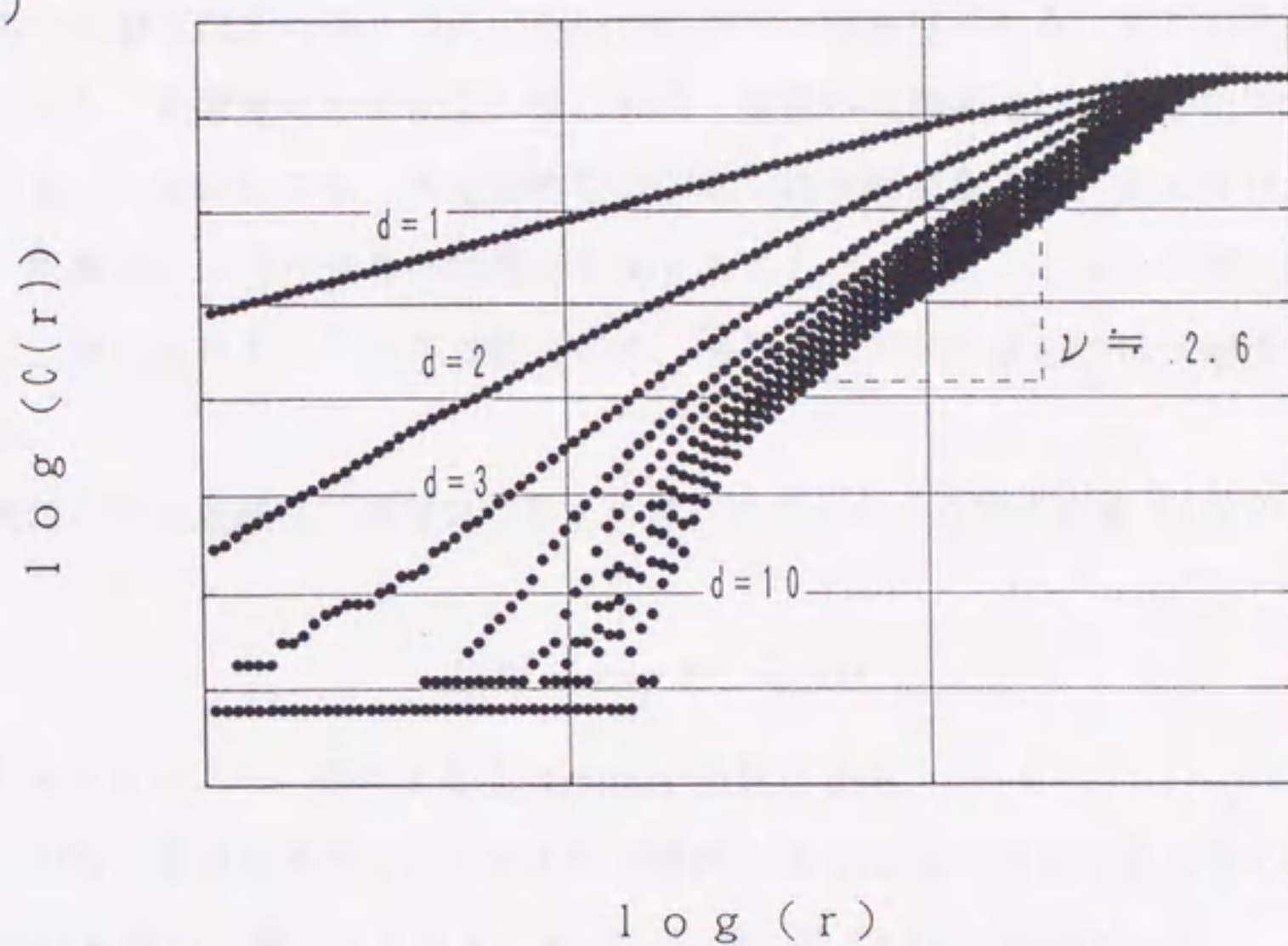
 $z(i)$  $x(i)$ 

図4-13 埋込みによる3次元相空間の軌道.  $\varepsilon = 0.169$ . (a);  $xy$  平面. (b);  $xz$  平面.

(a)



(b)

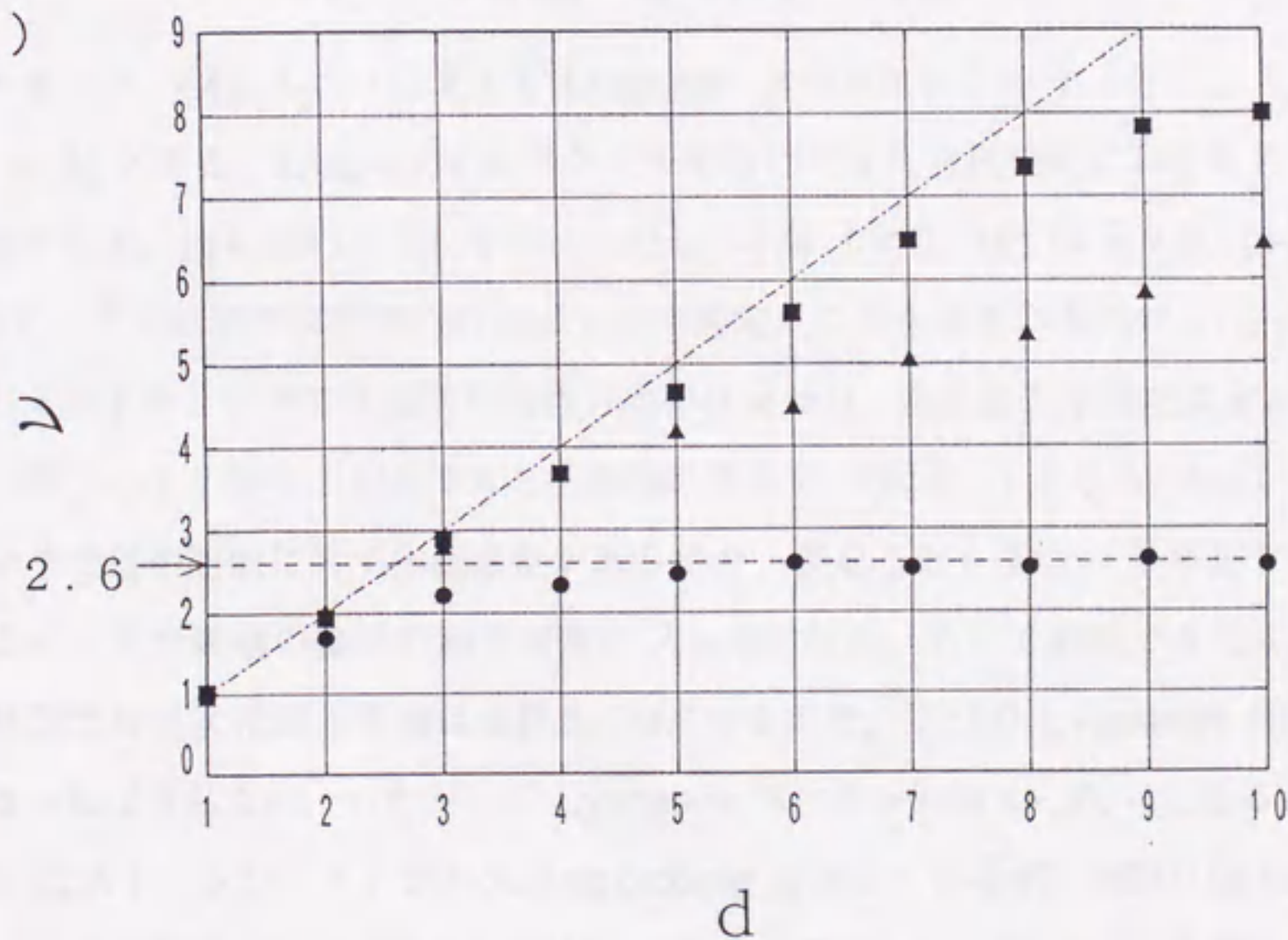


図4-14 相関次元の計算. (a) ;  $\log C(r)$  vs.  $\log r$ .  $d$  は埋込み次元. 直線部分の傾きが相関次元に相当する. (b) ;  $d$  vs.  $\nu$ . ● ;  $\epsilon = 0.169$  の測定値から計算した結果. ▲ ;  $\epsilon = 0.789$  の測定値から計算した結果. ■ ; 乱数の時系列から計算した結果.

4.3.3 Lyapunov 指数<sup>30,31)</sup>

カオスの重要な性質のひとつに、初期値に対する敏感性がある。同じ力学系に支配されていても、初期値がわずかでも異なれば、変数の時間変化は十分な時間が経過すれば全く違ったものになる。決定論的な力学系では初期値を正確に定め微分方程式を解けば、原理的には系の未来の状態を予測することができる。しかし実際には初期値を完全に正確に定めることは不可能なので、初期値に対する敏感性は予測不可能性に相当する。

初期値に対する敏感性は相空間で考えれば、軌道上の2点間の距離  $L(t)$  の時間発展が、

$$L(t) \sim \exp \lambda t, \lambda > 0 \quad (4.9)$$

と表されることをいう。この  $\lambda$  を Lyapunov 指数とよぶ。

次にこの考えを発展させて、 $n$ 次元相空間内の  $n$ 次元球の時間発展を考える (図4-15)。球の  $n$ 個の主軸ベクトル  $e_1, e_2, \dots, e_n$  が (4.9) と同様にして、

$$\|e_i\| \sim \exp \lambda_i t \quad (i = 1, 2, \dots, n) \quad (4.10)$$

と表されるとき、 $(\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_n)$  を Lyapunov スペクトルという。ただし  $\lambda_1 > \lambda_2 > \dots > \lambda_n$  とする。Lyapunov スペクトルを用いて3次元相空間におけるアトラクタを分類すると、図4-16のようになる。ただし (-) は  $\lambda < 0$ , (0) は  $\lambda = 0$ , (+) は  $\lambda > 0$  を表す。定常状態では空間内の点はすべて固定点に引き込まれるので、(-, -, -) となる。リミットサイクルでは軌道の接線方向では  $\lambda = 0$ , 垂直な2方向では  $\lambda < 0$  となるので、(0, -, -) となり、トーラスでも同様に考えて、(0, 0, -) となる。ストレンジ・アトラクタでは初期値に対する敏感性があるので、少なくとも1つの  $\lambda$  が正でなければならない。また軌道の接線方向では常に  $\lambda = 0$  である。そして前節でみたように、カオス状態では3次元球の体積は最終的に0になるので、3つの Lyapunov 指数の和は負にならねばならない。したがって Lyapunov スペクトルは (+, 0, -) となる。

(4.9) はストレンジ・アトラクタの stretching を表しているが、実際には folding も起こるので、軌道上の2点間の距離がすべての時間にわたって (4.9) を満たすわけではない。したがってアトラクタの正の Lyapunov 指数を計算するには次のように行わねばならない (図4-17)。まず  $t = t_0$  で初期値を決め、その初期値の乗る軌道とわずかに離れた軌道上にもう1つの点を取り、2点を結んで初期の線素  $L(t_0)$  とする。  $L$

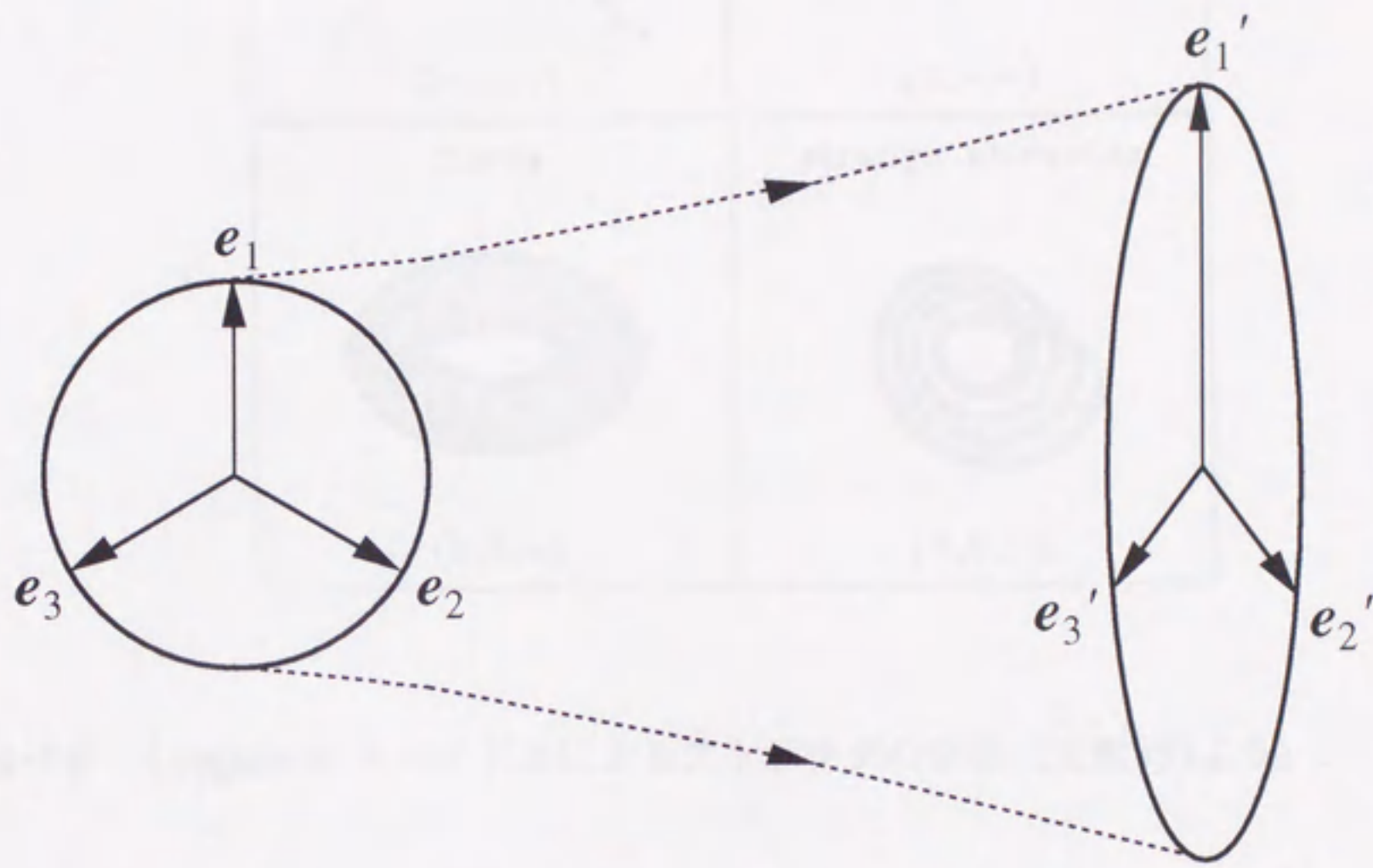


図4-15 相空間の3次元球の時間発展.



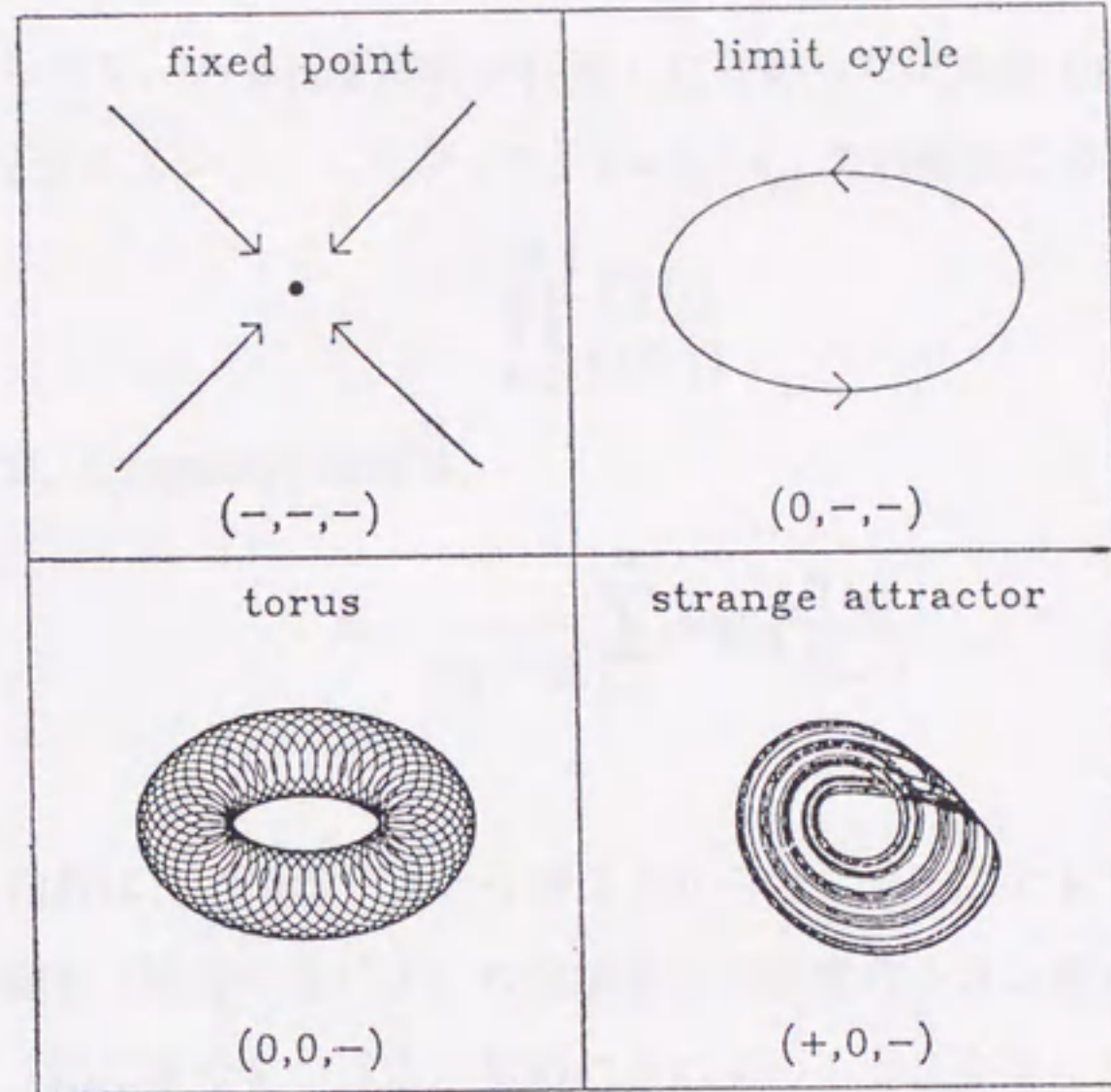


図4-16 Lyapunov スペクトルによるアトラクタの分類 (文献39)より。

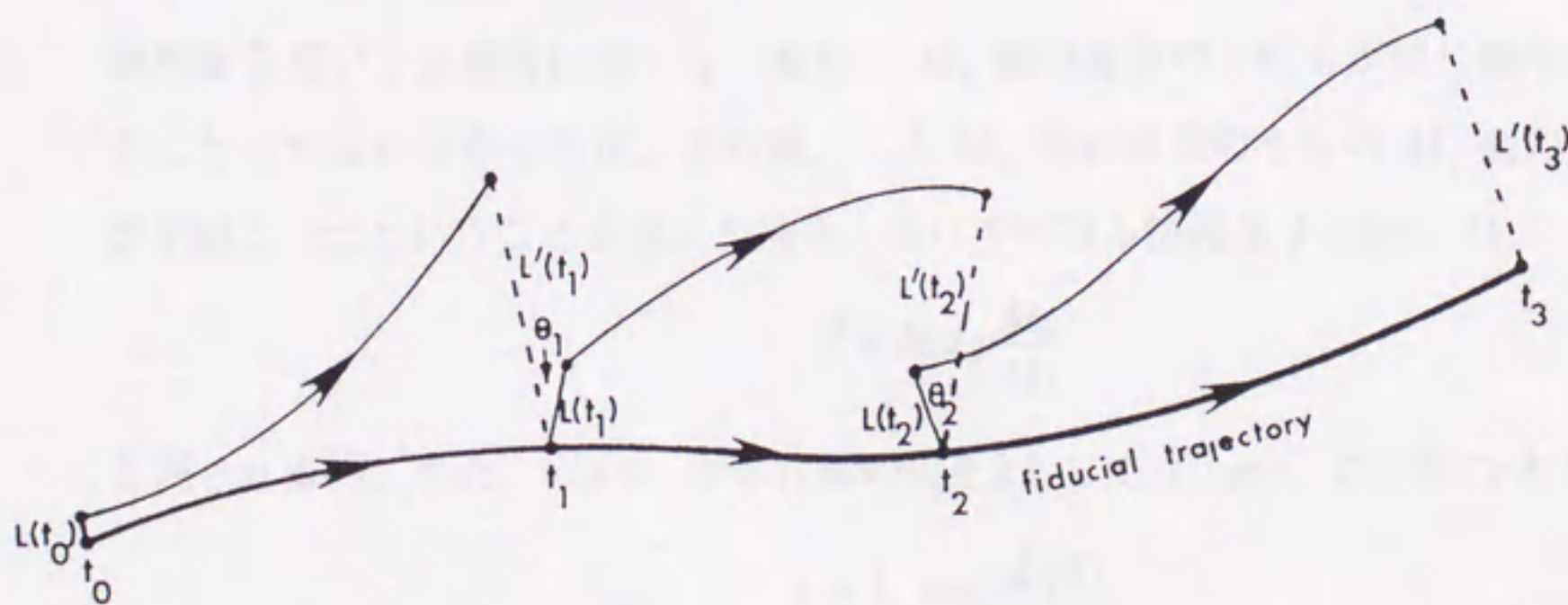


図4-17 Lyapunov 指数の計算 (文献36)より。

は(4.9)によって発展していき、 $t=t_1$ で $L'$ となるが、やがてfoldingによって伸び方が飽和するので、ある程度時間が経過したらあらたな線素 $L(t_1)$ をとりなおし、再び発展の様子をみていく。したがって、 $t=t_0 \sim t_M$ での線素の伸びは、

$$\prod_{k=1}^M \frac{L'(t_k)}{L(t_{k-1})} \quad (4.11)$$

と表されるので、Lyapunov 指数は、

$$\lambda \sim \frac{1}{t_M - t_0} \sum_{k=1}^M \log \frac{L'(t_k)}{L(t_{k-1})} \quad (4.12)$$

となる。

Lyapunov 指数は、“情報”という考え方からとらえることもできる。ある力学系の相空間を観測者(情報の受け手)の分解能と同程度の小さな箱に分け、それぞれを区別できるように箱に番号をつける。初めにその中の1つに点を1つ入れると、観測者は箱の番号というかたちでその点の位置に関する情報をもっていることになる。系がカオス状態になれば、その点がいつどの箱にいるか予測できるので、情報は失われない。しかしカオス状態になると、観測者は初めに点が箱の中のどの位置にいたかの情報はもっていないので、箱の大きさ程度の誤差が時間とともに指数関数的に増大し、 $\tau$ (sec)後には $\exp \lambda \tau$ 個の箱の中のどれかにいるということしかできない。つまりカオスによって初期値の情報が失われたことになる。この情報損失について、簡単な情報理論を用いて定量的に述べる。初めに $M_0$ 個の要素のどれもが同じ確率で起こりうることしか知らなかったが、その後、この $M_0$ 個の要素のうちの $M_1$ 個の要素のどれかが起こったということを知った場合、受け手が得る情報量 $I$ (bits)は、

$$I = \log_2 \frac{M_0}{M_1} \quad (4.13)$$

と表される<sup>35)</sup>。また、(4.9)から対数の底を2として $\tau$ (sec)の平均の $\lambda$ を求めると、

$$\lambda = \frac{1}{\tau} \log_2 \frac{L(0)}{L(\tau)} \quad (4.14)$$

となる。したがって、 $\tau$ (sec)に生成される情報量 $I$ (bits)は、

$$I = \log_2 \frac{L(0)}{L(\tau)} = -\lambda \tau \quad (4.15)$$

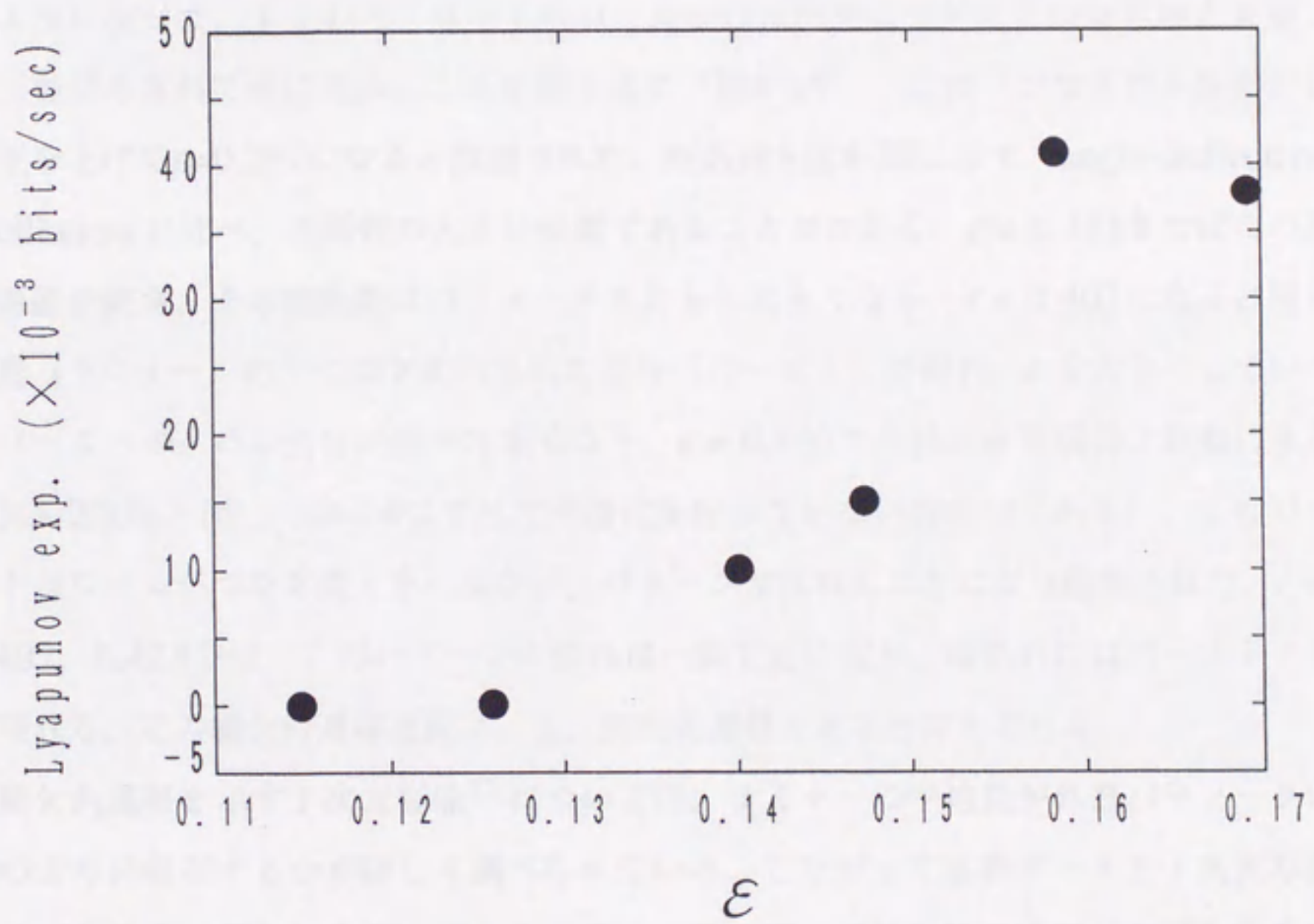
となり、結局、

$$\lambda = -\frac{I}{\tau} \quad (4.16)$$

となるので、Lyapunov 指数は単位時間に失われる情報量を表すことになる。

以上のような考えに基づいて、埋込みによって再構成された3次元相空間の軌道(図4-13)から Lyapunov 指数を求めた。実験で得られる軌道はデータ点の個数が有限であることなどさまざまな制限があるため、いくつかの工夫が必要である。本研究では、A. Wolf らの提案したアルゴリズム<sup>36)</sup>によって最大の Lyapunov 指数を計算した。

図4-18にその結果を示す。単位は、上述の情報理論を用いて bits/sec とした。 $\epsilon$  の小さいところで Lyapunov 指数は0になっているが、この部分の  $\epsilon$  は準周期に相当する。図4-16に示したように、トーラスの最大 Lyapunov 指数は0であり、この結果はそのことを表しているものと考えられる。 $\epsilon$  を大きくしていくと Lyapunov 指数も徐々に大きくなっていき、stretching に相当する不安定性が起こっていることがわかる。また、前節で相関次元を求めてアトラクタがフラクタル構造をもっていることを示した  $\epsilon = 0.169$  に対しては、正の Lyapunov 指数を得たので、この時系列の不規則性が系自身もつ不安定性によって生み出されたものであるといえる。

图4-18  $\epsilon$  vs. Lyapunov 指数.

#### 4.3.4 つなぎ換え振動と間欠性カオス

以上のように angle-deflective oscillation のカオス振動を観測したが、さらに電圧を上げていくと、局所的にロール・パターンの“ちぎれ”が観察されるようになった。さらに電圧を増すと、ちぎれたロールは他のロールと“つなぎ換え”を起こした。隣合うロールは対流の向きが逆なので、つなぎ換えは同じ向きの対流に相当する2つ隣のロールとの間で起こる。

さらに電圧を上げると、このつなぎ換えは空間的にコヒーレントな振動として起こるようになった。すなわち、すべてのロールがほぼ同時にちぎれてつなぎ換えを起こし、再びちぎれて元に戻る。これを繰り返す(図4-19)。この“つなぎ換え振動”は電圧を上げて $\varepsilon=0.297$ になると観測された。時系列を図4-20に示す。angle-deflective oscillation に比べ、振動数の大きい振動であることがわかる。 $\varepsilon=0.383$ まではこの周期振動が続き、その振動数はパラメータとともに大きくなる。 $\varepsilon=0.407$ になると周期振動(ラミナー)の中に間欠的に乱れた部分(バースト)が現れ、 $\varepsilon$ を大きくしていくとバーストの占める割合が徐々に多くなり、 $\varepsilon=0.440$ で全体が非周期的な振動になる(図4-20(b)~(d)、図4-20はすべて平滑化を行っていない時系列である)。このバーストはロールがつなぎ換えをし損ない、パターンが乱れることにより観測された。 $\varepsilon=0.407$ 、 $0.428$ では、このパターンの乱れは一瞬で元に戻り、時系列にはバーストとして現れる。この場合の遷移過程は、2. 間欠的遷移であると考えられる。

間欠的遷移を示す1次元写像<sup>37)</sup>については、ラミナーの平均長が外部パラメータにどのように依存するかが詳しく調べられている。したがって実験データと1次元写像を比べる場合、得られたデータからラミナー長を測って統計的に処理せねばならないが、いくつかのデータからなるラミナーの1つが、その統計処理の際のデータの1つとなるので、膨大な数の観測データが必要となる。ところが本研究では、データ点があまりに少ないことや、間欠的遷移の観測されたパラメータ領域が非常に狭いことからこのような解析をおこなうことは不可能であった。

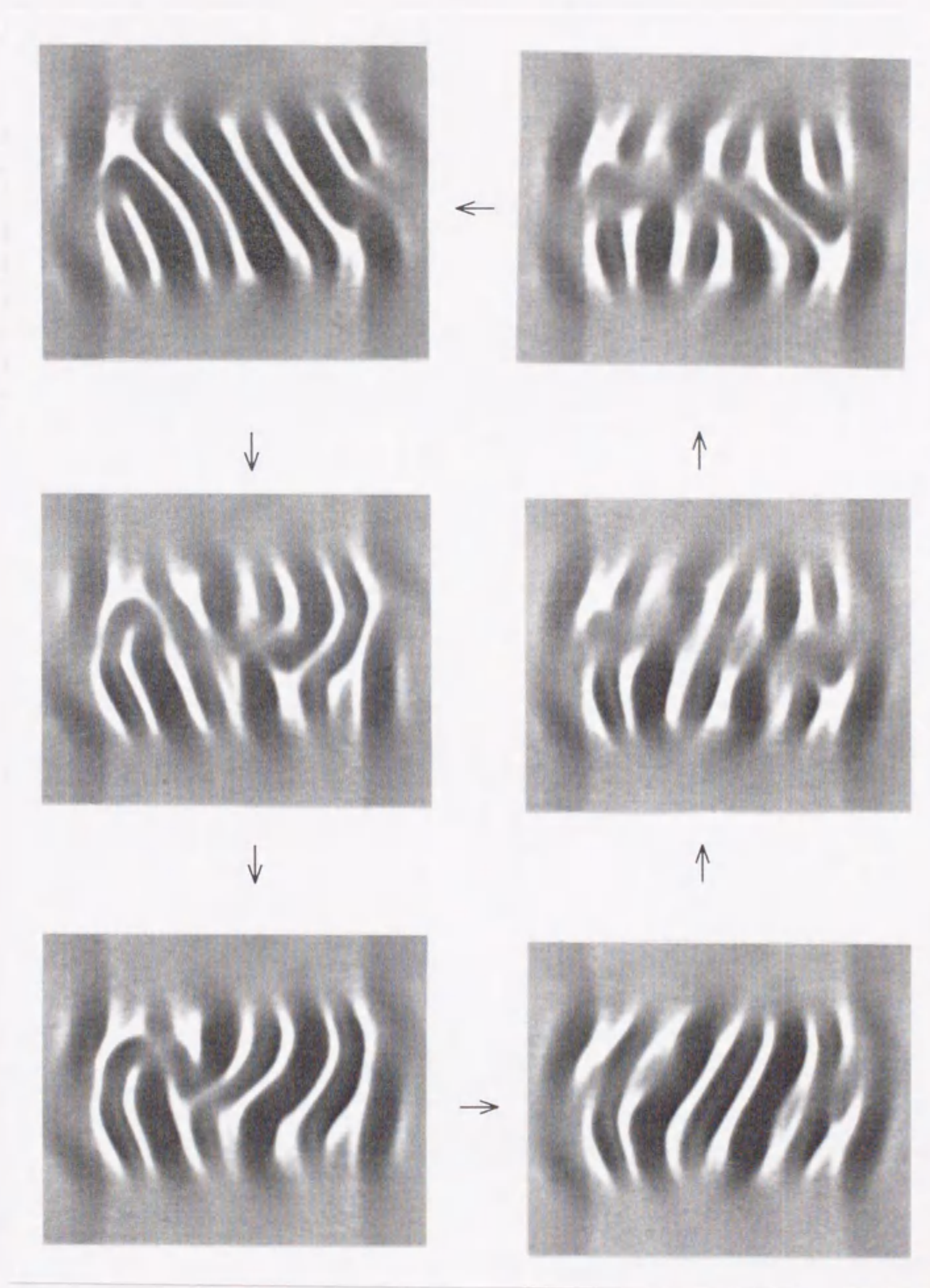
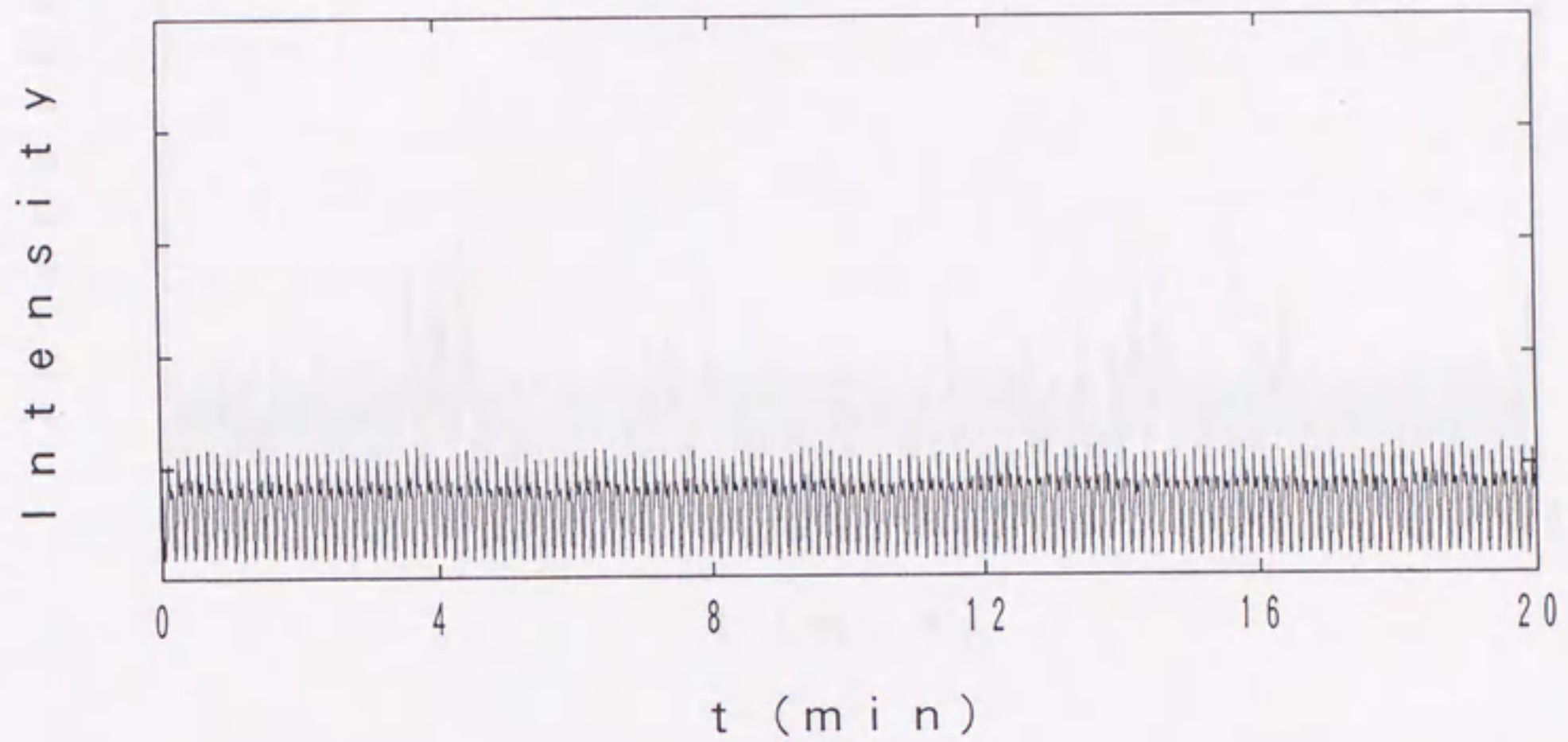
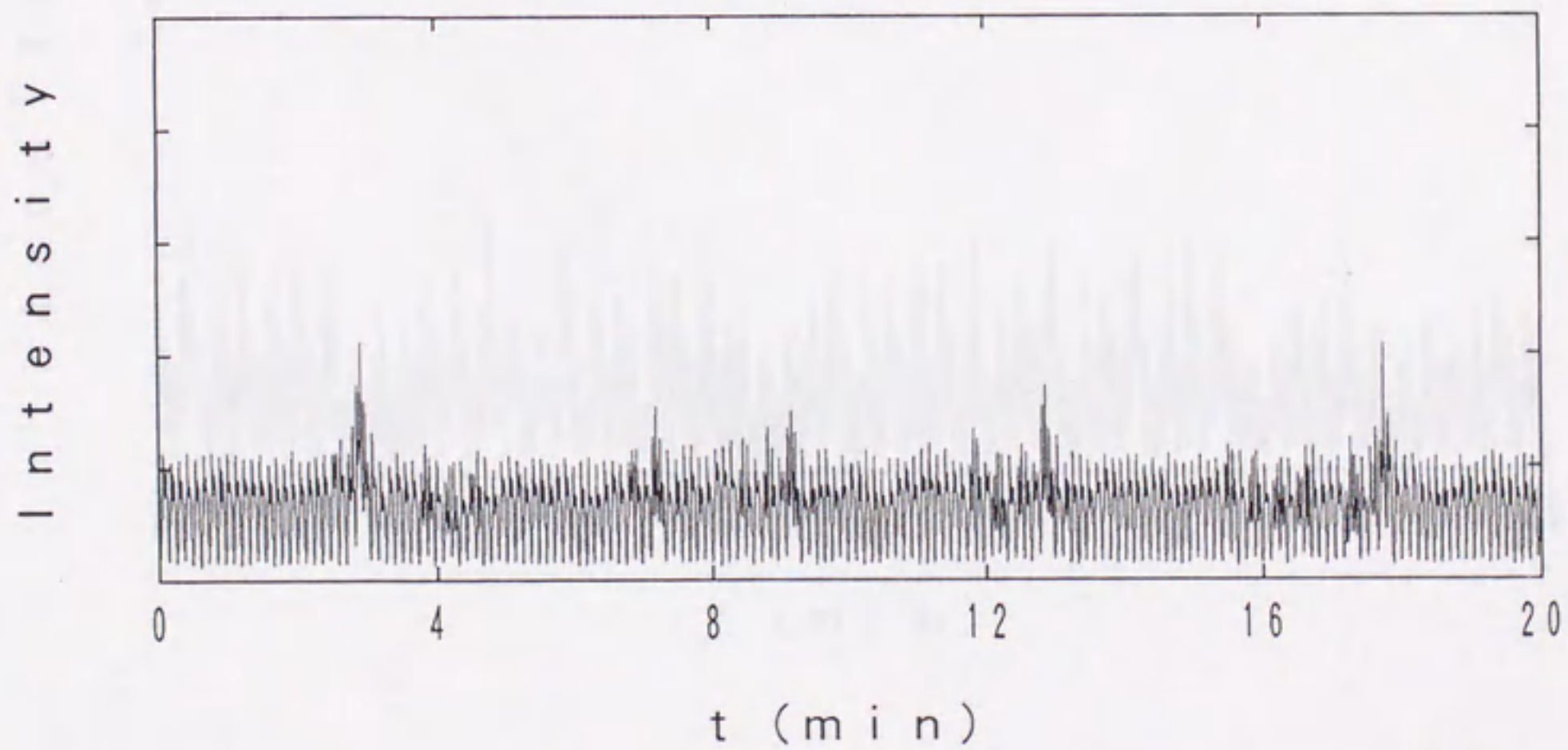


図4-19 つなぎ換えによる振動.

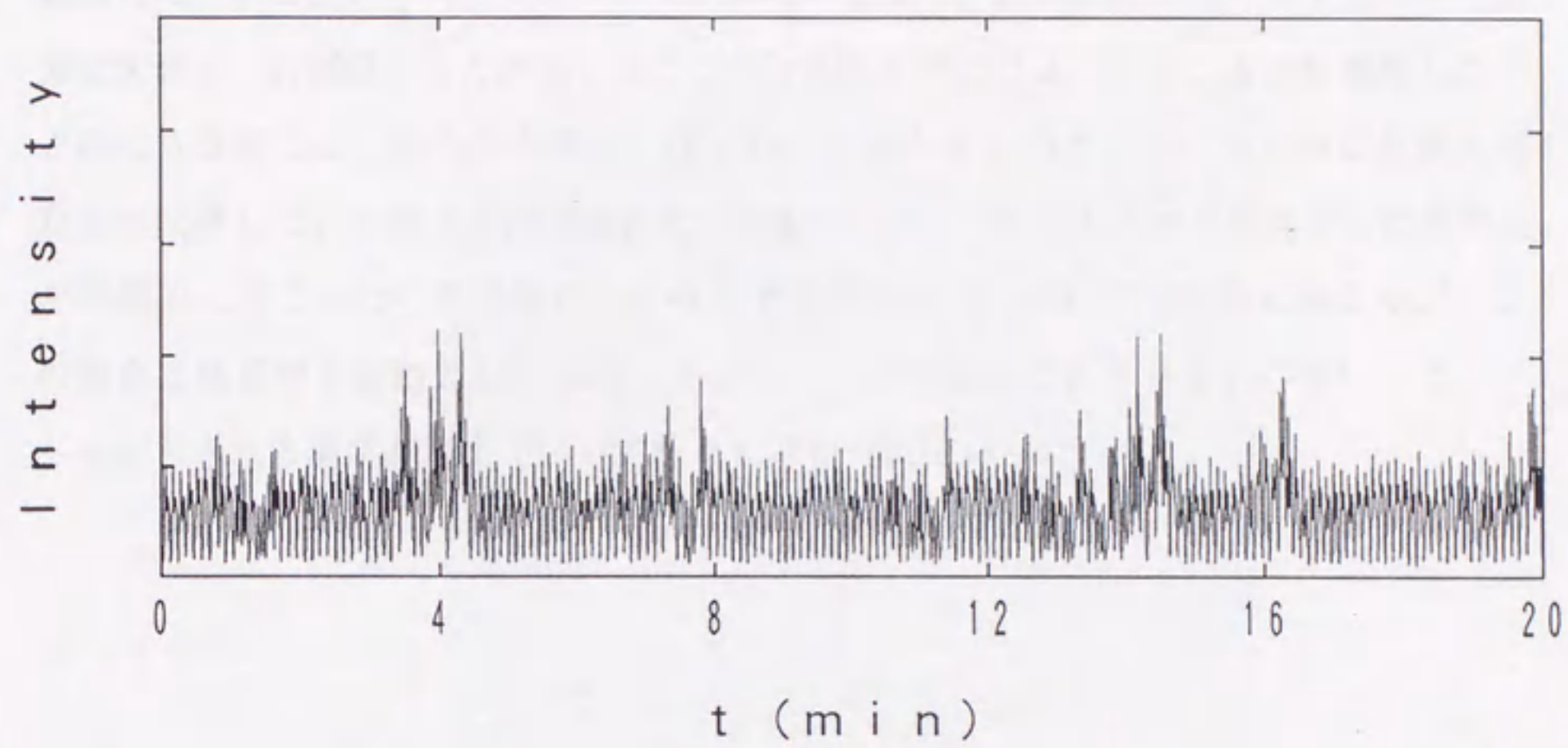
(a)



(b)



(c)



(d)

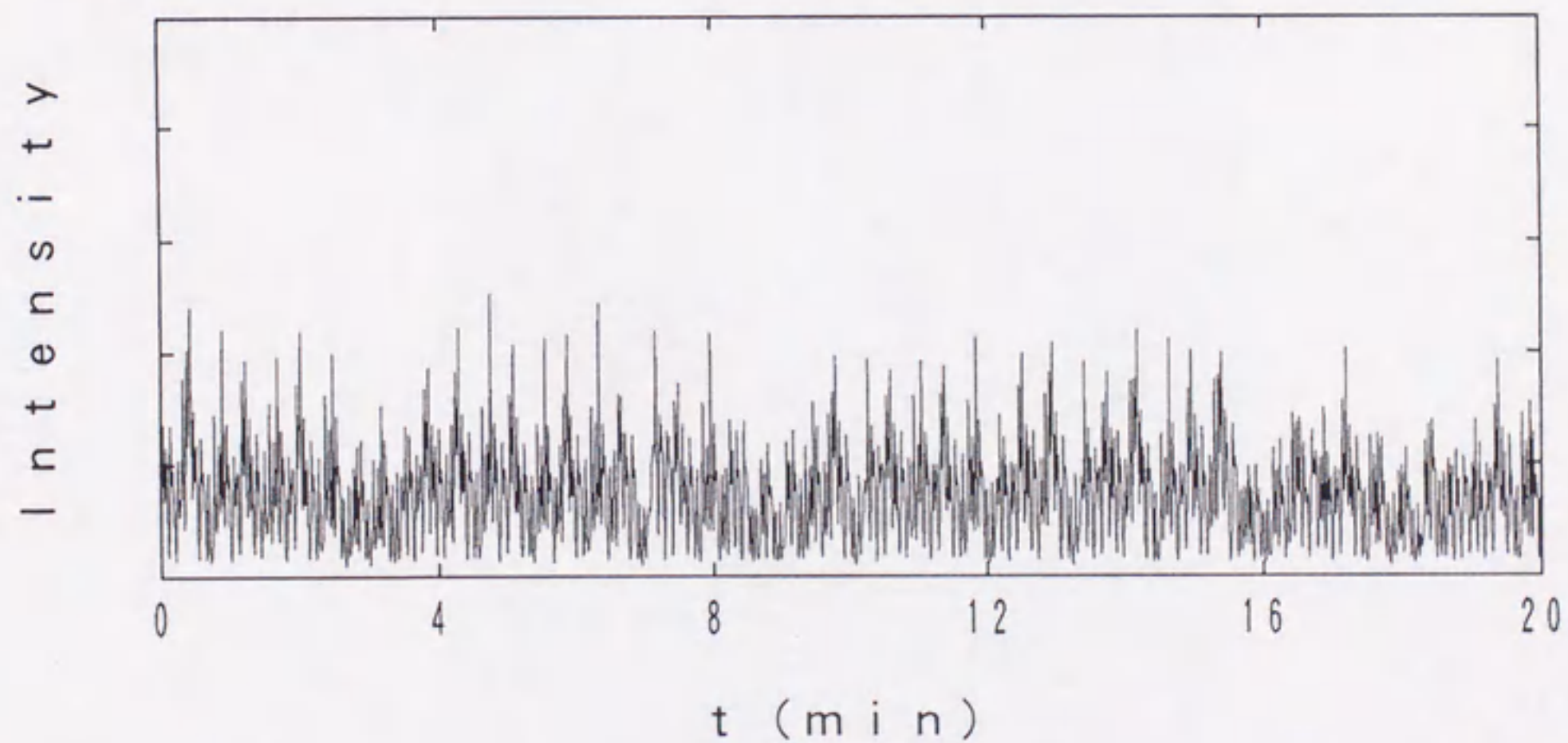


図4-20 つなぎ換え振動の時系列. (a);  $\varepsilon = 0.297$ . (b);  $\varepsilon = 0.407$ . (c);  $\varepsilon = 0.428$ . (d);  $\varepsilon = 0.440$ .



以上のように小アスペクト比系のEHC系で、つなぎ換え振動による間欠的遷移を観測した。次に、 $y$ 方向のアスペクト比をそのまま、 $x$ 方向のアスペクト比だけを十分に大きく（約200）した細長い系<sup>脚</sup>でつなぎ換えがどのように起こるかを観察した。このような系では、系内のある1ヶ所でロールがちぎれると、そこからつなぎ換えが左右に伝播していく様子が観測された（図4-21(a)）。小アスペクト比系でつなぎ換えが周期的に起こったのと同様に、この系でもロールのちぎれは周期的に起こるが、この場合は媒質中を波動として伝播していった。印加電圧の大きさを上げていくと、ロールがちぎれる場所が増えていって徐々に系が乱れていった。

<sup>脚</sup> 図2-1に示したセルとほぼ同じで  $\Gamma_y$  だけ2.0にしたセルを用いた。

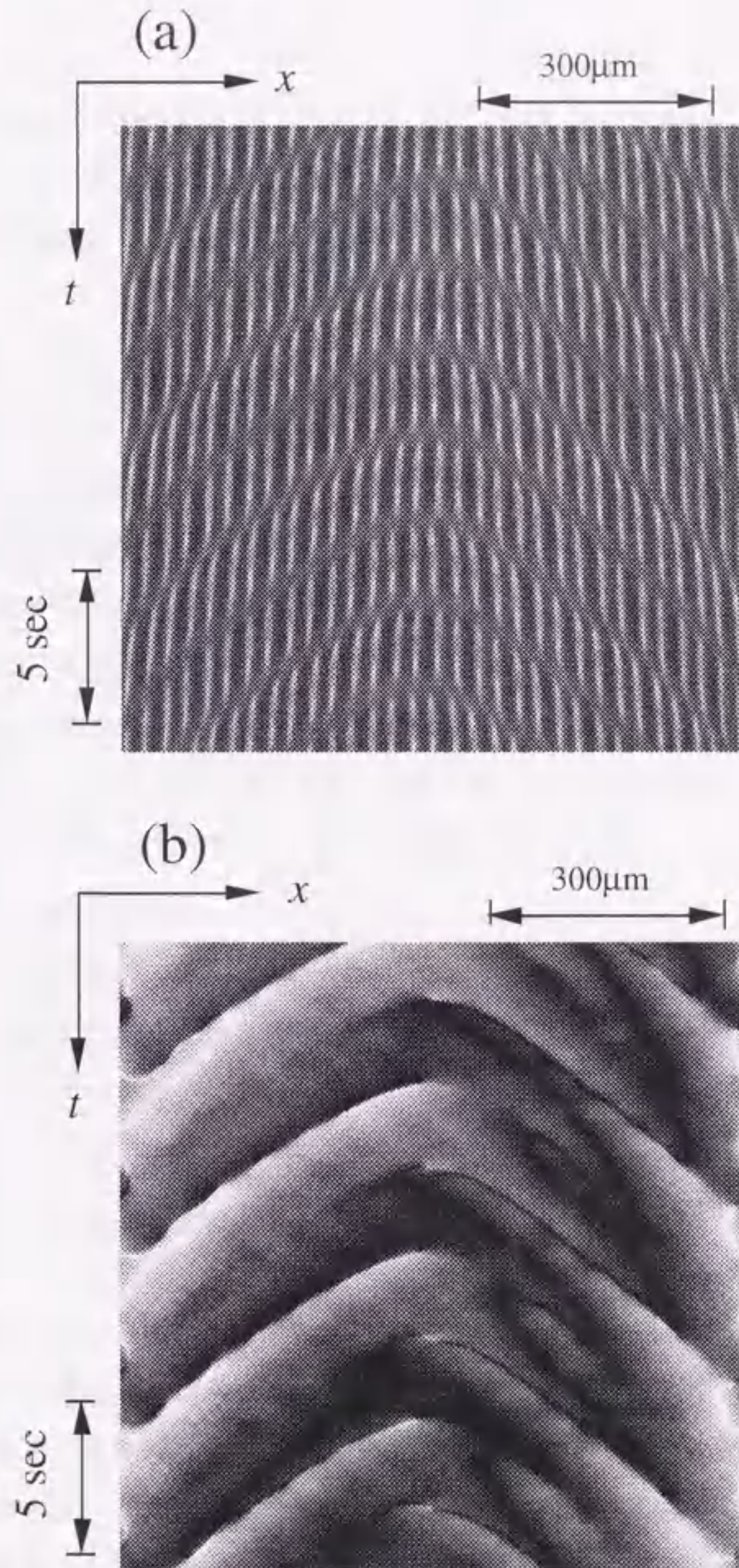


図4-21 つなぎ換えの伝播。(a) Williams domain の1次元 profileを時間の経過とともに並べたもの。(b) (a)から局所的に変化する位相 ( (2.3) 式の  $\phi(x)$  ) を抽出し、空間微分 ( $d\phi/dx$ ) をとったもの。位相のとびが白い部分として現れている。

## § 4.4 まとめ

液晶の電気流体力学的不安定性においてパターン不安定性という観点から、少数自由度カオス及びカオスへの遷移過程を観測した。系の時間変動は、流体変数の測定は行わず、光学顕微鏡下で観察されるパターンの時間振動、とくに小アスペクト比のセルでロール・パターンがその傾き角を周期的に変える、angle-deflective oscillation によって観測した。それによって以下のことが明らかとなった。

- 1) 振動振幅のスペクトルを観測することによって次のような「準周期崩壊過程」が見出された。外部パラメータを大きくしていくと、まず定常状態が不安定化して周期振動状態に分岐する。それが不安定化して準周期振動状態に遷移し、さらに準周期振動が壊れて非周期振動状態が現れた。
- 2) カオスになっていると考えられる非周期振動が、確かに低次元力学系に支配されていることをみるために、相空間の軌道のフラクタル次元と最大 Lyapunov 指数を求めた。フラクタル次元は2.6という値を得、最大 Lyapunov 指数も正となり、非周期振動が低次元力学系に生じた不安定性によって起こっていることがわかった。

同じ系のさらに外部パラメータの大きいところで、対流パターンのつなぎ換えによる周期振動を見出した。つなぎ換え振動に関する遷移過程について、次のことが明らかとなった。

- 3) つなぎ換えによる周期振動は、外部パラメータを大きくしていくと、間欠的遷移を経て非周期振動状態（乱流状態）へ至ることがわかった。

4.1.1で述べたように、対流系のアスペクト比を小さくすれば空間の自由度が抑えられて、乱流への遷移過程の時間的な側面のみがあらわになり、少数自由度系としてカオスを観測することが可能となる。理想的には、対流ロールが2個であればつなぎ換えなどの空間パターンの変化が完全に抑えられるので少数自由度系であると言えるであろう。実際にこれまでのRB対流での少数自由度カオスの観測は、アスペクト比が2程度で対流ロールが2個しか形成されない系で行われてきた。それに対し本研究では、用いたセルのアスペクト比は4であり、また対流ロールの数が6個の状態を観測を行った。事実、少数自由度系においてこれまで観測されてきた、ある遷移過程を経て

少数自由度カオスへ至り、さらに十分に発達した乱流に至るという一般の乱流への遷移過程は観察されなかった。しかし系にわずかに空間自由度をもたせたことによって、

- 4) 2段階のカオスへの遷移過程を経て乱流へ至るという興味深い現象、すなわち、初めに準周期振動が崩壊してカオスになった後に、さらに全く異なる周期振動が現れ、そこから間欠的遷移を経て乱流へ至るという遷移過程を、初めて観測することができた。

これは、少数自由度カオスに対する空間自由度の影響を考える際に重要な知見を与えるものと考えられる。

しかし現段階では、この系に生ずる現象を幅広くかつ詳細に研究できたとは言えない。例えば本研究では、パターンのほとんどの部分をマスクすることによって無視し、ごくわずかな部分のみの情報を抜き出して議論してきた。しかしながら対流現象・乱流現象は空間の自由度のある系で生じる現象であるから、時間空間的現象として一般化していく方向に研究を進めなければならない。

そのような「時空カオス」については、§ 1.1で述べた、位相ダイナミクスによって導出された「Kuramoto-Sivashinsky 方程式」による位相乱流の研究や、カオスを示す1次元写像を拡散的に結合することによって空間の自由度をもたせた「Coupled Map Lattice (CML)」の研究などが行われているが、いずれにせよ時間的コヒーレンスと空間的コヒーレンスがどのようにして破れるかに注目する必要がある。

4.3.4で見たつなぎ換えの伝播は位相ダイナミクスによって捉えることができると考えられる。ロールのちぎれは、その場所で位相が不連続に変化するので、第3章で見たような位相のとびとなって現れる。したがって、つなぎ換えの伝播は、ソースから周期的に発生した位相のとびが空間を伝播していく現象として捉えることができる(図4-21(b))。F. Daviaudらは、時間振動の位相と空間変動の位相の結合場のダイナミクスによって時空間欠性を議論したが<sup>38)</sup>、その場合も空間の位相のとびが伝播し、そのとびの密度が増えることによって乱流へ至る過程を調べている。本研究でも、 $x$ 方向のアスペクト比を大きくした系における angle-deflective oscillation やつなぎ換えの伝播を、位相ダイナミクスによって理解することが今後の課題となる。

CMLとの関連では、個々のロールを“振動子”とみなしその相関を調べるのが考えられる。第5章では、リミットサイクル振動をする2つのロール間の相関を調べた結果について述べる。

なおこの章で述べた研究結果は、

Y. Hidaka, H. Orihara and Y. Ishibashi: The Transition from Quasi-Periodicity to Chaos in the Electro-Hydrodynamic Instability of a Nematic Liquid Crystal, J. Phys. Soc. Jpn. **61** (1992) 3950-3959.

に発表された。

## 第5章 対流ロール間のリミットサイクル振動の相関

### § 5.1 はじめに

R B対流には、レイリー数（上下の温度差に相当）、アスペクト比以外に、動粘性率の熱伝導率に対する比で表され、ゆらぎの緩和を粘性緩和が支配するか熱拡散が支配するかを示すプラントル数とよばれるパラメータがある。プラントル数はレイリー数やアスペクト比とは違って物質によって定まるパラメータであるが、観察される不安定性はプラントル数にも依存することが知られている<sup>1-5)</sup>。R B対流では流体の浮力が粘性に打ち勝って対流が発生するのに対して、E H Cでの対流は静電的な力が弾性に打ち勝って起こる。したがって、ゆらぎの緩和が弾性歪みと空間電荷のどちらに支配されるかを表すパラメータがプラントル数に相当することになるが、印加電場の周波数の逆数がこれにあたり、「電気プラントル数」とよばれている<sup>6)</sup>。したがってE H Cにおいても観察される不安定性は印加電場の周波数によって変わる。例えば図5-1は、印加電場の周波数と Williams domain の波数の関係を示したもので、このように印加電場の周波数が高いほど周期パターンの波数も高くなる。本研究においても、第3章の結合対流系において、結合の強さが周波数によって変化することを見た。

R B対流の場合は、プラントル数は物質によって決まるパラメータであるが、E H Cの場合は電場の周波数なので、自由にかつ連続的に制御することができる。これまでも、印加電場の周波数によってパターンの波数が変化することを生かしてパターンの安定性の相図を作成した詳細な研究が行われている<sup>7,8)</sup>。

第4章で詳細に観測したように、アスペクト比の小さいE H C系では定常なロール状パターンが不安定化すると、ロールの傾きが周期的に変動する angle-deflective

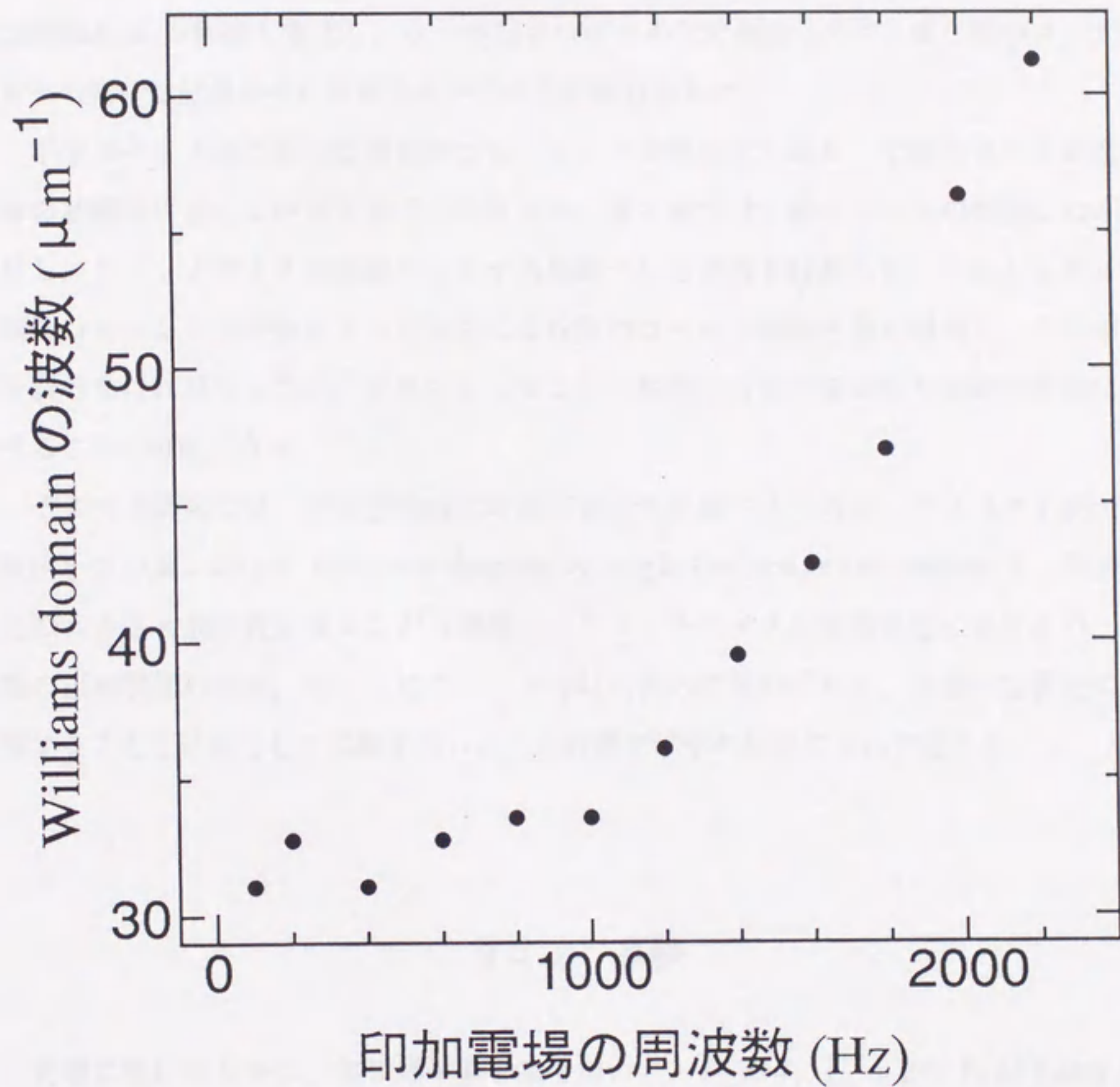


図5-1 印加電場の周波数と Williams domain の波数との関係.  $\varepsilon = (V^2 - V_{\text{th}}^2) / V_{\text{th}}^2$  ( $V_{\text{th}}$ : Williams domain 形成される電圧のしきい値) に対し,  $\varepsilon = 0.3$  の場合. セル厚  $50 \mu\text{m}$ , 測定温度  $40^\circ\text{C}$ .

oscillation を示す。第4章では、電圧の周波数を一定として、電圧の大きさのみを上げていったときの分岐過程を調べた。第4章で観察した振動は、初期のリミットサイクル振動からカオス振動まで、すべてのロールがほぼ一斉に動き、空間的なコヒーレンスは保たれていた。一方、電圧の周波数が高い状態では、angle-deflective oscillation の状態も変化し、ロールは2つずつの対で振動して<sup>iii)</sup>、また隣のロールの対との間には位相のずれがあるという状態が観察された。

小アスペクト比の系では空間的コヒーレンスが保たれており、1個のロールが系全体の状態を代表していると考えられるため、第4章では1個のロールの振動にのみ注目し、リミットサイクル振動からカオス振動へ至る過程を観測した。しかしながら空間的コヒーレンスが破れている場合には複数のロールの振動状態を観測し、その相関を調べなければならない。それによってより一般的に対流不安定性を時間空間的に調べる事が可能になる。

そこで本研究では、時間空間的に対流不安定性を調べるために、アスペクト比が比較的小さい系における Williams domain の angle-deflective oscillation を、印加電圧の大きさと周波数を変えながら観測し、リミットサイクル振動状態におけるロール間の振動状態の相関、特に上述のロールの対の間の位相のずれを、詳細に定量的に観測することを目的として実験を行った。この章ではその結果について述べる。

## § 5.2 実験

実験に用いたセルは、第3章や第4章で用いた、 $\Gamma_x = 4$ ,  $\Gamma_y = 2$  の Free Lateral Boundary Cell である。実験系は第2章の図2-3と同じだが、セルの温度を Mettler FP80 によって30°Cに保って測定を行った。

印加電圧の周波数は1.0 kHz から1.8 kHz まで0.2 kHz 間隔で変化させ、電圧の大きさは第4章と同様に  $\varepsilon = (V^2 - V_{th}^2) / V_{th}^2$  ( $V_{th}$ : angle-deflective oscillation のしきい値) によって規格化する。電圧の周波数を上げると、しきい値などは高電圧側にシフトするので単純に比較はできないが、この式で規格化することによって、それぞ

<sup>iii)</sup> ロール状対流では、右回りロールと左回りロールが交互に並んでいるので、これが対になって振動しているものと考えられる。



れの周波数で観測される現象を同じパラメータ値で比較できるようになる。画像解析装置には、第2章の1次元系の場合の観測方法と同様に、Williams domain を横切る  $x$  軸に平行な直線上の濃淡のみを、512個の画素からなる1次元 profile として取り込んだ。ただし第2章の測定では、Williams domain の中心を横切る直線上の濃淡を取り込んだが、この章の測定では、中心より約1/4上を横切る直線上の濃淡のみを取り込み、それによって angle-deflective oscillation を観測した。時間変動を観測するために、このような1次元 profile を512本サンプリングした。サンプリング時間は、angle-deflective oscillation の振動数に応じて0.12~0.60 sec とした。

### § 5.3 結果と考察

上述のようにして取り込んだ512本の1次元 profile を時間経過とともに並べると、図5-2のような  $x-t$  図が作成できる。この章の実験でも虚像を観測したが、§ 1.2で述べたように、Williams domain の虚像の明線の位置はロール軸の位置に相当する。§ 5.1で述べたように、ロールは2本ずつ、すなわち左回りと右回りが対になって振動していることが図5-2からわかる。したがって隣り合ったロール対の振動を、例えば(a)の1.0 kHz の場合ならば、左から2番目の明線の位置と1つ離れた明線の位置をたどることによって観測した。すると図5-3(a)のようにリミットサイクル振動の時系列が2つ得られる。図5-3(b)は1.8 kHz の場合で、同様に隣り合ったロール対の振動を観察することで得た時系列である。(a)と(b)では横軸の時間スケールが違っており、angle-deflective oscillation の振動数が印加電圧の周波数によって大きく異なっていることがわかる。

図5-3で、(a)、(b)どちらも上の時系列を  $x_1$ 、下の時系列を  $x_2$  とすると、

$$x_1 = A_1 \cos(2\pi f_1 t + \theta_1) + \text{harmonics} + C_1 \quad (5.1)$$

$$x_2 = A_2 \cos(2\pi f_2 t + \theta_2) + \text{harmonics} + C_2 \quad (5.2)$$

と表わすことができる。フーリエ変換によってこの  $\theta_1$  と  $\theta_2$  を求め、それに対し、

$$\Delta\theta = \theta_1 - \theta_2 \quad (5.3)$$

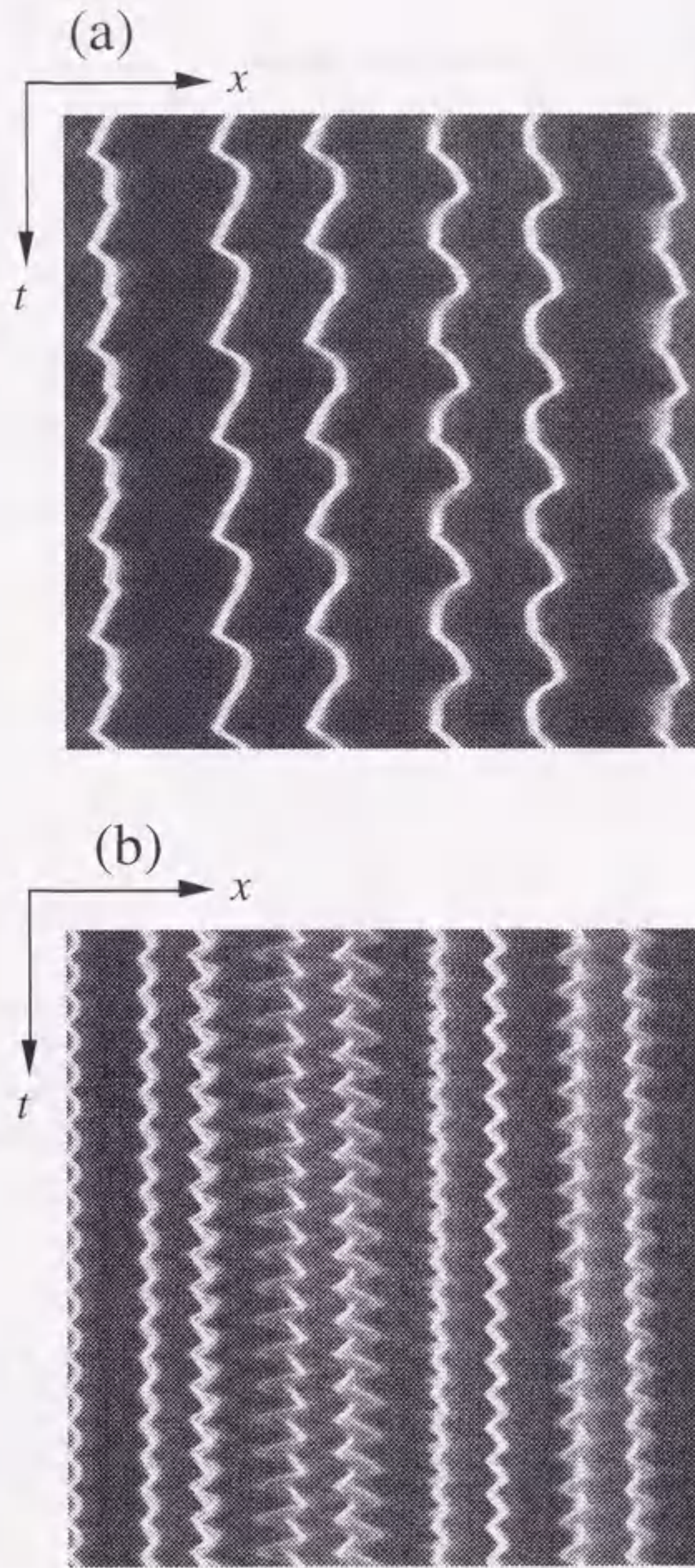


図5-2  $x-t$  図. (a) ; 印加電圧の周波数が1.0 kHz の場合. (b) ; 1.8 kHz の場合.

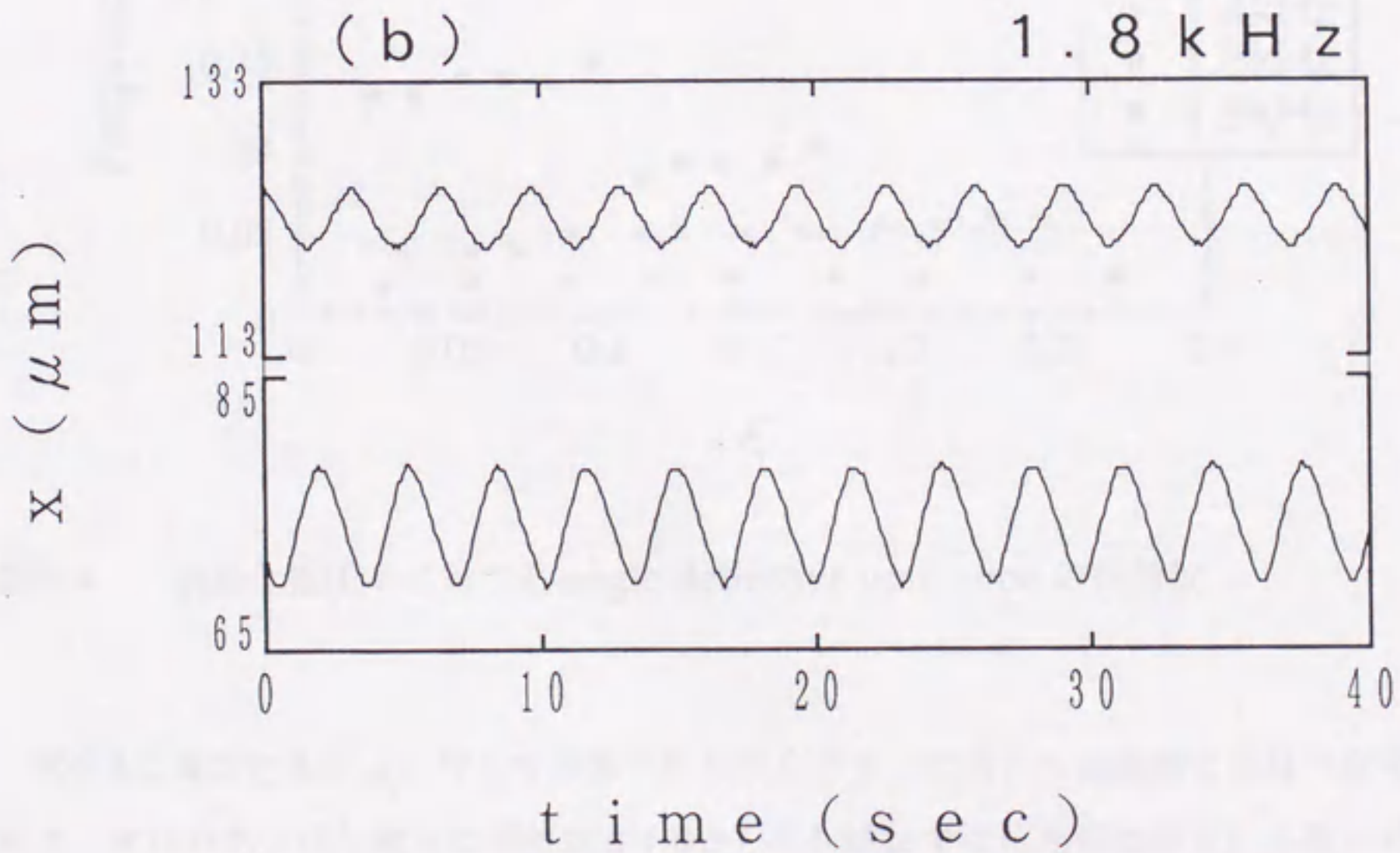
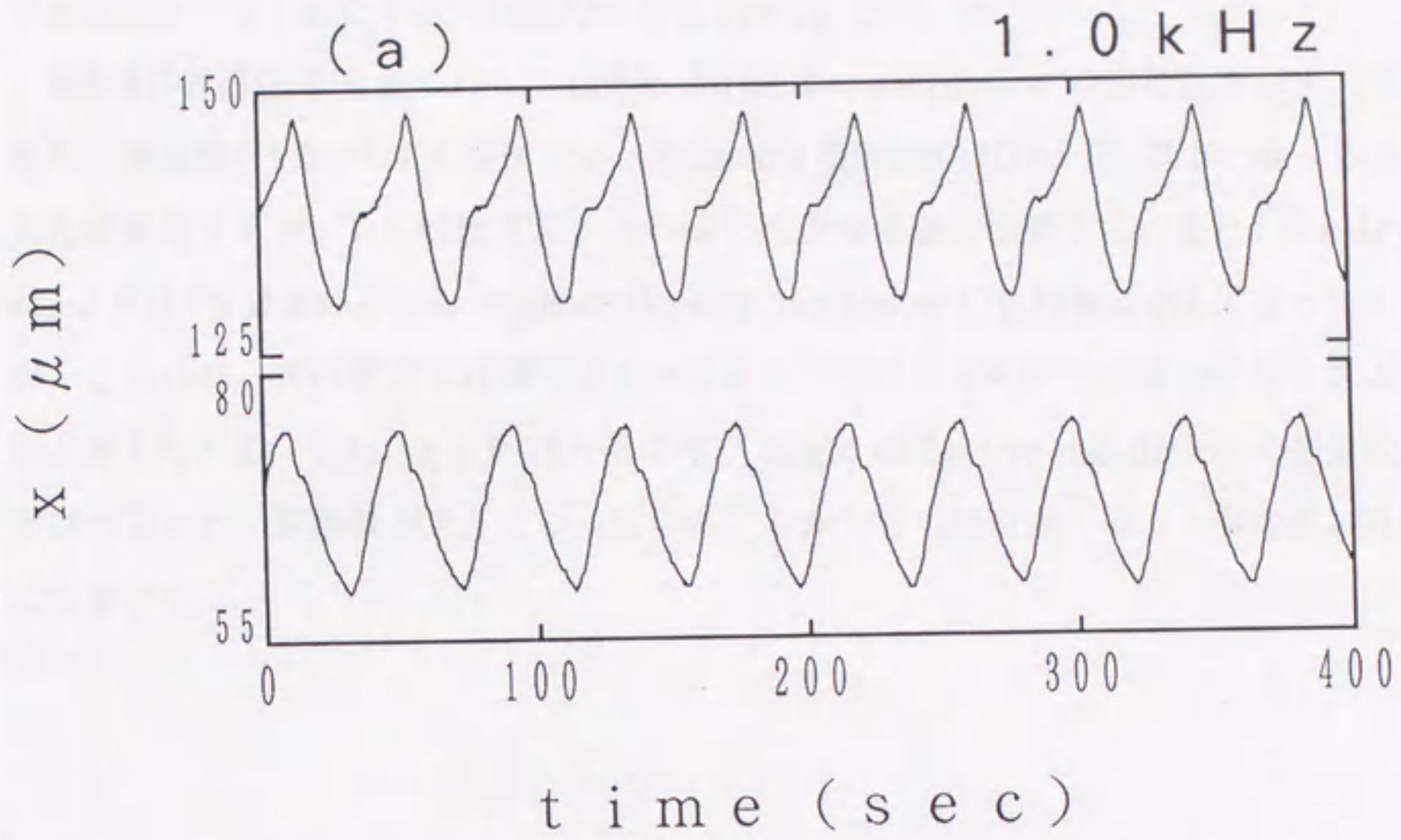


図5-3 明線の位置座標  $x$  をたどることによって得た時系列. (a); 印加電圧の周波数が1.0 kHz の場合. (b); 1.8 kHz の場合.

を位相差とする。また今回の実験では常に  $f_1 = f_2$  であった。

図5-4に規格化電圧  $\varepsilon$  に対して angle-deflective oscillation の振動数を示す。印加電圧の周波数が1.0から1.4 kHz では、Williams domain は0.05 Hz 以下のゆっくりとした振動をするが、1.8 kHz では、それよりもかなり速く振動する。また1.6 kHz では、 $\varepsilon = 0.1$ 付近でいったん angle-deflective oscillation の振動数は小さくなっているが、これはロールの数が1対増えることによってパターンの安定の度合が高くなるためと考えられる。また、 $\varepsilon = 0.18$ 付近で再び angle-deflective oscillation の振動数にとびが見られ、振動数が大きくなっている。しかしこの場合は、ロール数の増加は起こらなかった。

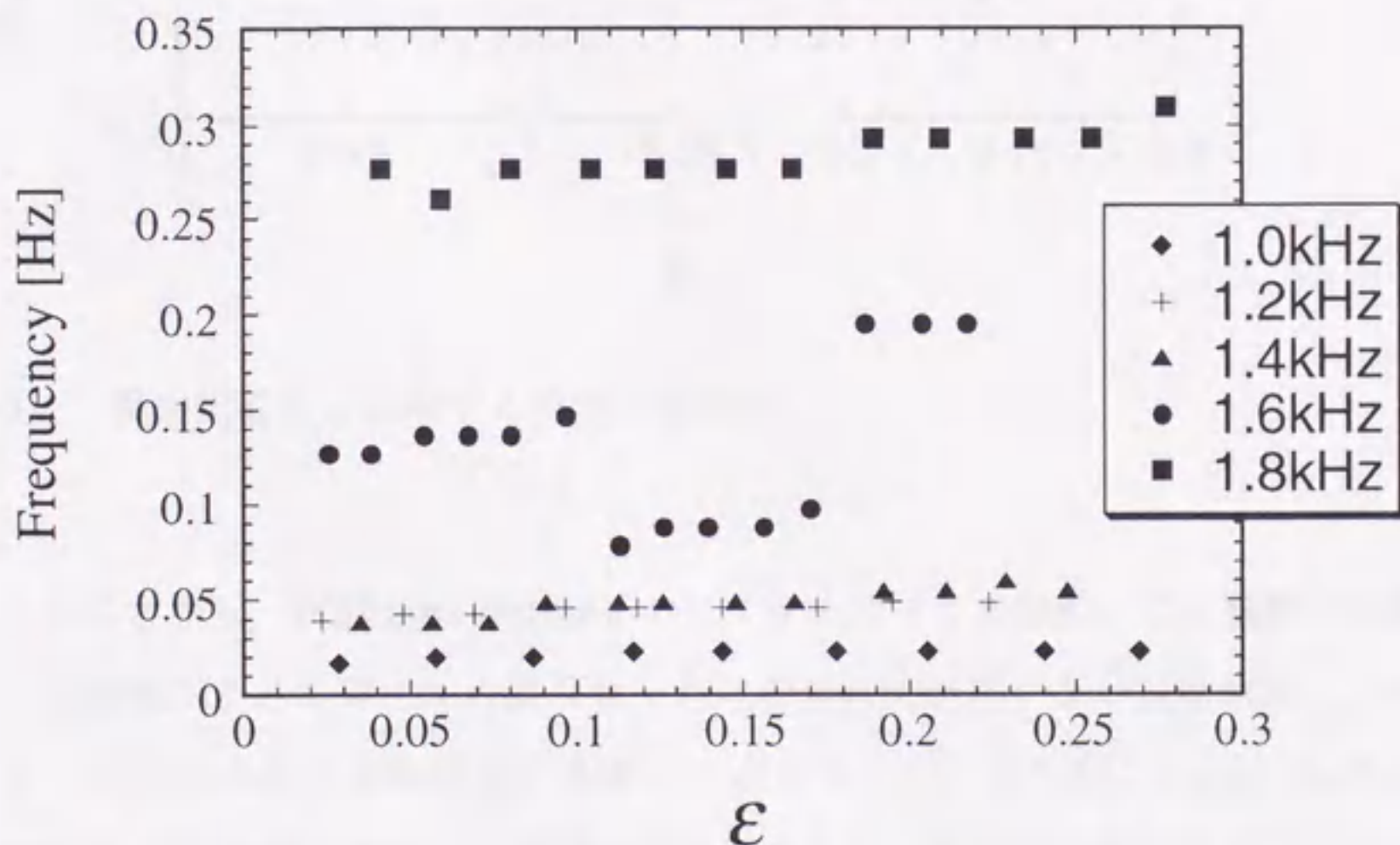


図5-4 規格化電圧  $\varepsilon$  に対する angle-deflective oscillation の振動数。

図5-5に規格化電圧  $\varepsilon$  に対して振動の位相差を示す。位相差も振動数と同様の変化を示す。すなわち、印加電圧の周波数が1.0から1.4 kHz では位相差は非常に小さいが、1.8 kHz では大きな位相差を示す。ただし 1.6 kHz では、angle-deflective oscillation の振動数が大きく変化し、ロール数が増加した  $\varepsilon = 0.1$ 付近では、位相差に

変化は認められなかったが、ロール数が増加した  $\varepsilon = 0.18$  付近では位相差にとびが見られ大きな位相差になっている。

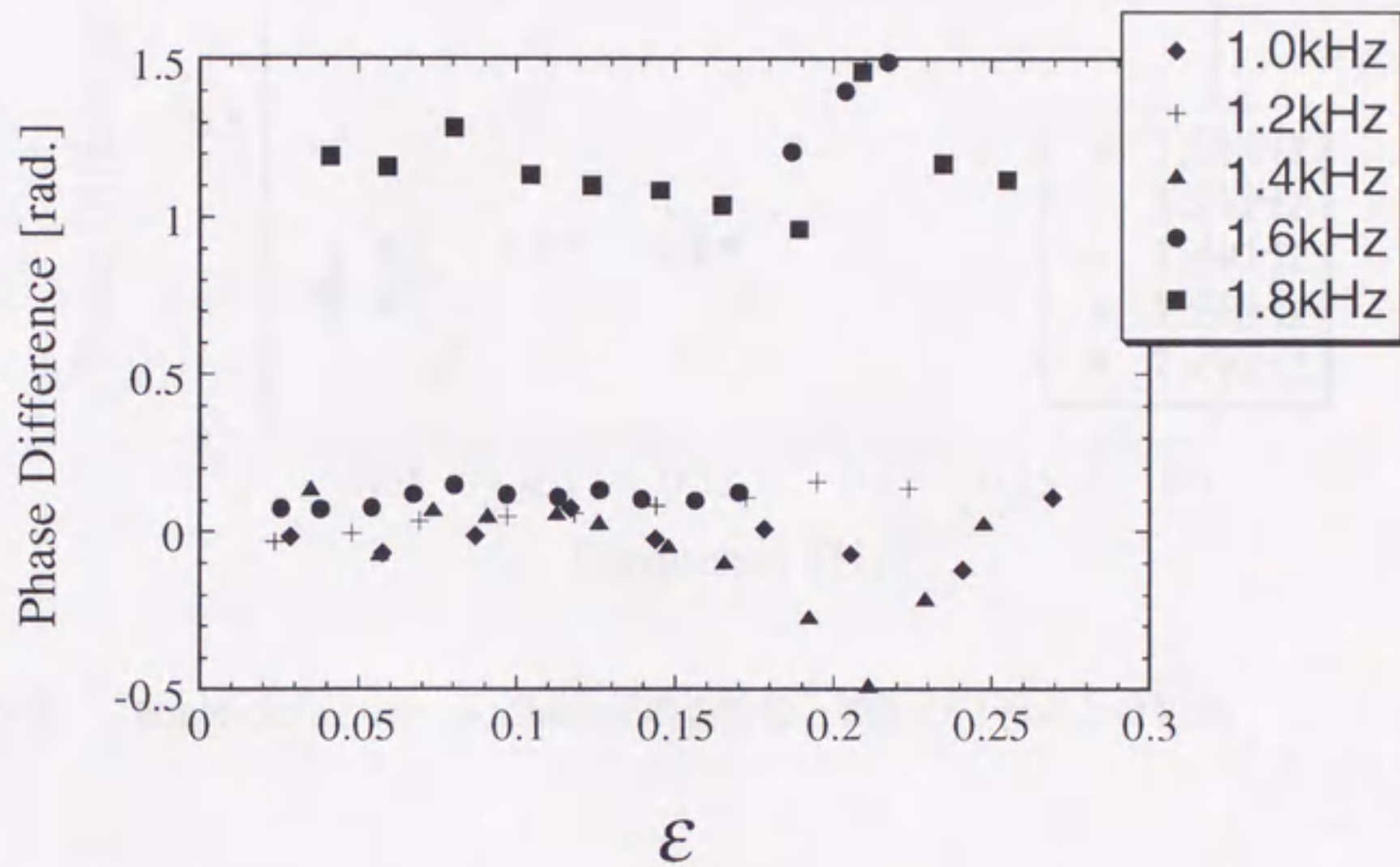


図5-5 規格化電圧  $\varepsilon$  に対する振動の位相差。

以上のことから、Williams domain のリミットサイクル振動には2種類の状態、すなわち振動数が小さくロールの隣り合った対の間に位相差がない振動状態と、振動数が大きく位相差のある振動状態があることがわかった。図5-6に angle-deflective oscillation の振動数と振動の位相差との関係を示す。前者の振動状態がこの図の左下に、後者の状態が右上に現れる。したがって2種類の振動状態が明確に区別でき、印加電圧の大きさや周波数を変化させると、その間を1次転移的に移り変わることがわかる。

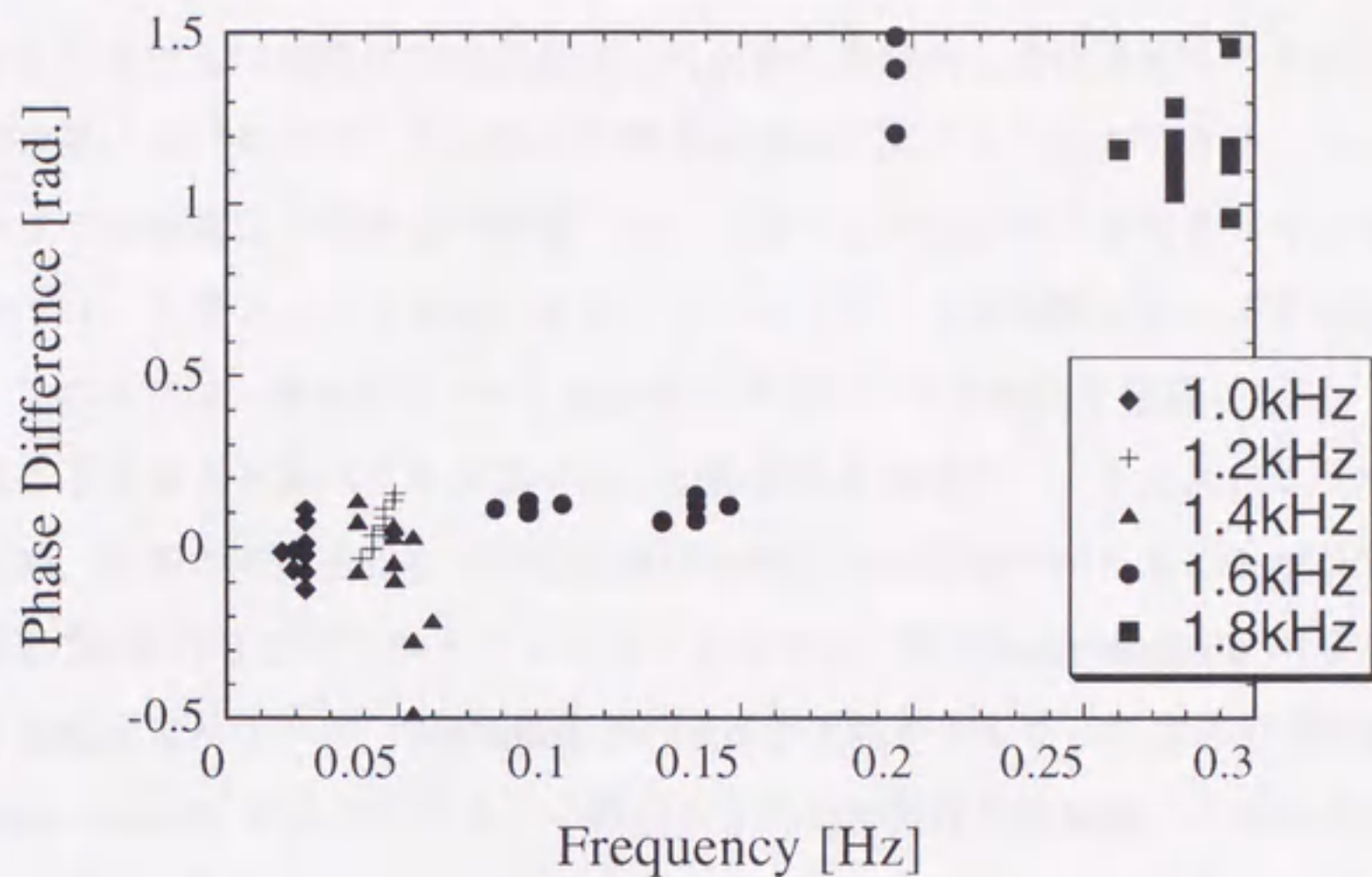


図5-6 angle-deflective oscillation の振動数と振動の位相差との関係。

#### § 5.4 まとめ

アスペクト比の小さいEHC系において、リミットサイクル振動をしているロールの対の間の振動状態の相関を調べた。angle-deflective oscillation の振動数とロールの対の間の位相のずれの、印加電圧の大きさと周波数に対する依存性を測定した。それによって以下のことが明らかとなった。

- 1) 振動数が小さくロールの隣り合った対の間に位相差がない振動状態と、振動数が大きく位相差のある振動状態があることがわかった。
- 2) 印加電圧の大きさや周波数の変化に対して、2種類の振動状態の間を、1次転移的に移り変わることがわかった。

§ 5.1 で述べたように、EHCにおける印加電圧の周波数は、RB対流におけるプラントル数に相当する重要なパラメータである。RB対流におけるプラントル数は、

外部からコントロールすることはできず物質によって決定されてしまうため、水、水銀、液体ヘリウムなど代表的な物質のプラントル数の場合しか議論されていない。一方EHCにおける印加電圧の周波数は、外部から連続的に変化させることができるため、対流系におけるプラントル数の影響を定量的に調べることができる。しかしながらこれまで印加電圧の周波数の影響について調べた研究はあまり行われてこなかった。本研究では、小アスペクト比系に生じたリミットサイクル振動に限ってその影響を調べた。この系では、個々のロールを振動子とみなしてその相関を観測したが、図2-1のような1次元的大アスペクト比系では、振動状態を位相ダイナミクスによって記述できるため、位相の空間変化などに印加電圧の周波数の影響が現れることが予測される。また図2-2のような2次元的大アスペクト比系では、Williams domain のリミットサイクル振動は現れないが、Williams domain が欠陥をともなって揺らぐ fluctuating Williams domain が観測される。その揺らぎの相関距離の印加電圧の周波数に対する依存性なども興味あるテーマとして上げることができる。

## 第6章 まとめ

### § 6.1 本研究のまとめ

本研究では、液晶の電気流体力学的対流 (EHC) を用いて、非線形非平衡系に形成される散逸構造に関する実験的研究を行った。非線形非平衡現象は、空間的にも時間的にも実に多彩な様相を見せるが、その中でも特に、対流パターンの形成過程や時間振動など、空間構造の時間発展・時間変化についてそのふるまいを明らかにした。液晶内に生じた対流構造は、液晶の光学的異方性によって光学顕微鏡下で濃淡の2次元“パターン”として観察することができるので、液晶の電気流体力学的対流を用いれば、3次元対流構造における本質的な情報のみを2次元パターンに縮約することによって、マクロな対流構造のふるまいを詳細に調べることができる。本研究でも、光学顕微鏡下のパターンの運動の観察を行い、さらにパターンの濃淡の時間変化を動的な画像解析の手法などを用いて測定した。

対流系の外部パラメータをしきい値以上に上げると、静止状態が不安定化してロール状対流が生じる“primary instability”が起こる。まず第一に、一様な系に1次元周期をもった定常な対流パターンが形成される primary instability の過渡過程を定量的に観測した (第2章)。境界の影響を受けない一様な大自由度系に周期パターンが形成される過程における一般的な性質を明らかにするために、多数の対流ロールが形成されるアスペクト比の大きなセルを用いた。ロール軸方向のアスペクト比が非常に小さい1次元系と、ロール軸方向のアスペクト比も十分に大きい2次元系のそれぞれに対して、2種類の初期状態からの形成過程を観測した。ひとつは電場ゼロ、すなわち流れのない静止状態で、もうひとつは高電場、すなわち乱流状態である。また、パターンにフーリエ変換を施し、パワースペクトルにおける周期性の発達を観測した。

系の次元や初期条件に関わらず、パターンの振幅は比較的早い段階で成長して一定となり、その段階ではパターンは局所的に周期的になる。そしてその後は、周期的な



部分間の競合によって全体が周期的になっていく。1次元の場合は、局所的に周期的になっている状態は、局所的な位相の滑らかな空間変動によって表現され、その状態は位相の拡散過程によって緩和していった。この過程は1次元振幅方程式から導出できるので、実験で得られた結果と比較した。周期性の発達を表わす1次元パワースペクトルのピークの幅が、 $t^{-1/4}$  則にしたがって鋭くなっていくことがわかった。

2次元系の場合は局所的に周期的な状態はトポロジカルな欠陥を含む。欠陥は周期パターンに埋め込まれた位相特異点として現れ、拡散過程ではなく欠陥の対消滅によって周期的でより安定なパターンへと遷移していった。電場ゼロの初期条件の場合は、フーリエ・スペクトルに初めに楕円形のスポットが現れ、それがそのまま収縮していき、異方性は見出されなかった。乱流の初期条件の場合は、円周上に広がったスペクトル・パターンが初めに現れ、それが円周上と動径方向に同時に収縮していった。1次元の場合と同様に2次元スペクトル・パターンの時間変化を調べたが、振幅が成長している時間領域と、成長しきって一定のまま変化しない時間領域とで、スポットの幅の時間変化に違いが見られた。また欠陥対の間の距離  $l$  が、 $l^2 \propto (t - t_0)$  で表される時間変化を示し、最終的に対消滅することがわかった。

第二に、アスペクト比の小さな系におけるパターン形成過程の観察を行った（第3章）。小アスペクト比系は大アスペクト比系とは逆に、境界条件の違いが系全体に影響を及ぼす。アスペクト比が小さく側面が自由境界の系を実現するために、交差した帯状電極を用いてセル内の液晶の一部にだけ電場が印加されるようにした“Free Lateral Boundary Cell”を開発し、周期パターン（Williams domain）の形成過程を調べた。対流ロールは系の両端から現れ、中央に向かって成長する。ロールは中央で衝突し、そこでは周期パターンの位相のとびと振幅の消滅が見出された。また、一方の側面が自由境界条件で、もう一方の側面が剛体境界条件である系においては、剛体境界でのロールの出現が自由境界よりも遅れることがわかった。

さらに、自由境界条件をもつ2つの同一の対流系を結合した「結合対流系」を初めて開発し、そこでのパターン形成を観察した（第3章）。まず液晶分子の配向方向（ $x$ 方向）に結合した系でのパターン形成について調べた。各々のサブシステムでは上述の小アスペクト比系と同様に系の両端から出現したロールが中央に向かって成長するが、サブシステムどうしが接している内側の境界からのロールの出現は外側の境界よりも遅れる。位相のとびと振幅の消滅も小アスペクト比系と同様にロールの衝突する

場所で見出され、サブシステム間の中間領域では生じなかった。一方のサブシステムでのパターンの成長過程は、もう一方のサブシステムの状態に影響される。同一の電圧の下では、サブシステムは同じロール数になり、系全体で周期を一様にしようとする傾向がある。しかし、各々のサブシステムでロール数が増える臨界電圧付近では、ロール数が異なる非対称パターンが形成された。

次に、液晶分子の配向方向 ( $y$  方向) に結合した系でのパターン形成について調べた。この系では、一方にすでに安定なパターンが存在する状態でもう一方のサブシステムにどのようにパターンが形成されるかを調べ、空間パターンの引き込み現象を観測した。まず、一方のサブシステムにあらかじめ存在するパターンと同じ波数をもったパターンが、後からもう一方のサブシステムに形成される場合、相手に近い場所ほど相手に引き込まれて速やかに安定なパターンが形成されることがわかった。また、ロール数が増加する臨界電圧がもう一方のサブシステムの状態に影響されることがわかった。

対流現象では、外部パラメータをさらに上げていくとロール状対流パターンが再び不安定化するが、この“secondary instability”には、系のアスペクト比の違いによって空間構造に着目する観点と時間構造に着目する観点がある。一般にアスペクト比の大きい系では、1次元周期パターンが欠陥をともなって揺らぎ始め、さらにロール軸方向に周期的な歪みが生じ2次元周期パターンが現れる。小アスペクト比での secondary instability は、定常な流れのパターンが不安定化して対流構造自体の大局的な時間振動が生じる現象である。初めに「リミットサイクル振動」とよばれる非線形周期振動が現れ、さらに外部パラメータを上げていくと、ある特徴的な遷移過程を経て少数自由度カオスへ至る様子がレイリー・ベナール対流において観測されている。

本研究では液晶の電気流体力学的対流において、secondary instability の時間構造に着目し、パターンの不安定性という観点から、少数自由度カオス及びカオスへの遷移過程を観測した(第4章)。小アスペクト比系を実現するために、上述の Free Lateral Boundary Cell を用いて実験を行った。

系の時間変動は、流体変数の測定は行わず、光学顕微鏡下で観察されるパターンの時間振動、とくに小アスペクト比の系でロール・パターンがその傾き角を周期的に変える angle-deflective oscillation を、セル上の1点における透過光強度の時間変化によって観測した。

まず、定常状態が不安定化してリミットサイクル振動状態に分岐し、さらに不安定化して準周期振動状態に変化していく過程が見出された。カオスになっていると考えられる非周期振動が、確かに低次元力学系に支配されていることをみるために、相空間の軌道のフラクタル次元と最大リアプノフ指数を求めた。フラクタル次元は2.6という非整数の値を得、最大リアプノフ指数も正となり、非周期振動が低次元力学系に生じた不安定性によって起こっていることがわかった。

同じ系の外部パラメータのさらに大きいところで、対流のロール・パターンをつなぎ換えによる周期振動を観測した。またその周期振動が、間欠的遷移を経て非周期振動状態（乱流状態）へ至る過程が見出された。

小アスペクト比の系では空間的コヒーレンスが保たれており、1個のロールが系全体の状態を代表していると考えられるため、1個のロールの振動にのみ注目してリミットサイクル振動からカオス振動へ至る過程を観測した。しかしながら空間的コヒーレンスが破れている場合には複数のロールの振動状態を観測し、その相関を調べなければならない。それによってより一般的に対流不安定性を時間空間的に調べる事が可能になる。そこで本研究では、時間空間的に対流不安定性を調べるために、アスペクト比が比較的小さい系における Williams domain の angle-deflective oscillation を、印加電圧の大きさと周波数を変えながら観測し、リミットサイクル振動状態におけるロール間の振動状態の相関、特に上述のロールのペアの間の位相のずれを、定量的に観測した。それによって、振動数が小さくロールの隣り合ったペアの間に位相差がない振動状態と、振動数が大きく位相差のある振動状態があることが明らかとなった。

EHCにおける印加電圧の周波数は、レイリー・ベナール対流におけるプラントル数に相当する重要なパラメータである。レイリー・ベナール対流におけるプラントル数は、外部からコントロールすることはできず物質によって決定されてしまうため、水、水銀、液体ヘリウムなど代表的な物質のプラントル数の場合しか議論されていない。一方EHCにおける印加電圧の周波数は、外部から連続的に変化させることができるため、対流系におけるプラントル数の影響を定量的に調べることができる。本研究では、小アスペクト比系に生じたリミットサイクル振動に限ってその影響を調べた。

## § 6.2 今後の展望

第2章の大アスペクト比系における1次元周期パターンの形成過程に関しては、2次元系の周期パターン形成過程におけるトポロジカルな欠陥の運動と、局所的な位相やスペクトル・パターンの時間変化との関係をさらに詳細に明らかにする必要がある。また、1次元系で行ったような振幅方程式との比較も行わねばならない。EHCの現象の時間スケールが比較的短いという特長を生かして繰り返し測定を行ったが、現段階では平均のみで議論した。§2.1で述べたように、静止状態が不安定化して別の定常状態へ遷移する過程において分散が異常に大きくなる現象が多くの分野で観測されている。1次元周期パターンの形成過程においても、波数成分や位相、振幅など、本研究で観測した量についてこの現象が観測される可能性がある。また、fluctuating Williams domain や2次元周期パターンの形成過程などの定量的観測にも、動的な画像解析と波数成分、位相、振幅の観測を組み合わせた解析方法が応用できると考えられる。

第3章の結合対流系に関しては、サブシステム間の距離を近づけるなどして結合を強め、パターン形成過程、angle-deflective oscillation などの相関を調べる。また、サブシステム間の相関と印加電場の周波数との関係をさらに明確なものにすることが、今後の課題として上げられる。

第4章、第5章のパターンの時間振動に関しては、まず本研究で用いた  $\Gamma_x = 4$  の系において観測したロール間の振動状態の相関を、カオスに至る範囲まで拡げて観測することが上げられる。本研究でも見られたように、少数自由度カオスの状態では6~10個のロールの範囲では空間的コヒーレンスは保たれている。しかしながら、 $\Gamma_x$  を充分大きくした系においては、充分に離れたロールの間では相関が小さくなっているであろう。したがって振動の相関距離の印加電場の周波数に対する依存性を調べることにより、興味深い現象を観測できると考えられる。そのような1次元大アスペクト比系における angle-deflective oscillation は、局所的な位相によって表現できるので、位相ダイナミクスとの関連でこの現象を捉えることができる。現在までの時空カオスに関する実験的研究は、時空間欠性に関する対する統計的な解析が主に行われているが<sup>1-4)</sup>、これらの観測によって、時空カオスに対する全くあたらしい実験的知見を得ることができると考えられる。

非線形非平衡現象は非常に多彩で、対流現象に限っても系のおかれた条件をわずかに変えるだけで観測される現象は大きく異なる。したがって、それらの現象から本質的な情報を抜き出すためには、現象が顕著になるように条件を整えねばならず、どうしても各論的になりがちであった。われわれは未知の複雑で多彩な現象にも興味を引かれるが、既知の現象を総論的にまとめる必要もある。EHCについていえば、プラントル数に相当する印加電場の周波数が連続的に変えることができ、また大アスペクト比系を作るのが容易であることに加え、本研究で用いた Free Lateral Boundary Cell を組み合わせれば、アスペクト比を連続的に変化させることができる。したがって、プラントル数とアスペクト比に対する定量的で詳細な知見が得られる観測を行うことができるであろう。そして最終的には、印加電圧の大きさ  $V$ 、周波数  $f$ 、アスペクト比  $\Gamma$  を3軸とする相図を作成しなければならない。

§ 1.1でも述べたように、対流現象を初めとした非線形非平衡現象は、時間的にも空間的にもわれわれの日常生活と同じスケールであり、比較的容易に観察することができる。しかし、非線形非平衡現象を数理的に扱うためには、目の前に繰り広げられるパターンの時間空間的変動から、系を特徴づける変量を引き出す工夫が必要となる。その際には、位相・振幅のダイナミクスによるアプローチを念頭においた位相や振幅の時間空間変化や、パターンの空間的特徴を表す統計量の時間変化、逆にパターンの時間的特徴を表す統計量の空間変化などが、そういった系を特徴づける変量になりうると考えられる。実験あるいは数値計算等から得られた非線形非平衡パターンから、これら系を特徴づける変量を引き出す手法の開発も今後のテーマとして上げられる。既存の理論的アプローチを現実の非線形非平衡パターンに応用する手法だけでなく、これまでにない独創的な理論的アプローチを示唆するような、新たな変量の探索も必要となるかも知れない。

対流系以外の非線形非平衡系としては、まず生体系があげられる。対流系のパターン形成は生体の形態形成と関連があるし、引き込みによるコヒーレンス<sup>5)</sup>やカオス<sup>6)</sup>は生体においても観測されている。一方、本研究を行う間に多くの種類の対流パターンの「ダイナミクス」を観察してきたが、その最大の特徴は現象が生き生きとしていることであった。生体系が非線形非平衡系であることを考えると、生体の生き生きとした感じも非線形非平衡現象によってもたらされているのかも知れない、と思えるほどであった。われわれの視覚の情報処理能力は非常に高く、パターン・ダイナミクスの

観察から多くの情報を半ば感覚として得ることができた。そして、対流系におけるその生き生きとした感じは、ときとして現象の本質と結び付いているように感じることもあった。しかしそれを科学として数理的に扱うためには、生き生きとした感じを失わないようにしつつ、本質的な情報だけを抜き出さなければならない。今後の非線形非平衡現象の研究においては、そういった情報の抽出をいかにして行うかが、非常に重要になるであろう。

## 謝 辞

本研究を終えるにあたって、日頃からご指導ご鞭達いただいた、名古屋大学工学部石橋善弘教授に深く感謝致します。

研究テーマを与えていただき、日頃から適切なお指導をいただいたばかりでなく、研究が行き詰まったときには有益なアイデアも与えてくださった、名古屋大学工学部折原宏助教授に深く感謝致します。

本論文の草稿を閲読していただき、さまざまな観点からご助言ご批判いただいた、名古屋大学工学部金田行雄教授に厚く御礼申し上げます。

また、身近なところからさまざまな点に有益なお助言ご協力をいただき、本研究の遂行を陰から支えてくださった、長屋智之博士（名古屋大学工学部 助手）に深く感謝致します。そして日頃お世話になった、名古屋大学工学部人工結晶研究施設第1部門の皆様方に感謝致します。

パターン電極付きガラスの作成に協力していただいた、日本電装株式会社 山田祐一郎博士、山本典生氏に厚く御礼申し上げます。

共同研究者であった、下川和郎氏（現 筑波大学大学院工学研究科大学院生）、宮崎由都氏（名古屋大学大学院工学研究科大学院生）、佐藤嘉展氏（名古屋大学工学部4年）に感謝するとともに、今後のご活躍に期待致します。

1995年1月

日高芳樹

## 補記

A. 局所的な振幅  $R(x)$  と位相  $\phi(x)$  の抽出

1次元 profile,  $I(x)$  が,

$$I(x) = R(x)\cos[k_0x + \phi(x)] \quad (\text{A.1})$$

と書けるとする.  $I(x)$  の実験データから振幅  $R(x)$  と局所的な位相  $\phi(x)$  を抽出する.

(A.1) を

$$I(x) = \text{Re}[R(x) \cdot e^{ik_0x} \cdot e^{i\phi(x)}]$$

と書き直し,

$$R(x) \cdot e^{i\phi(x)} \equiv A(x)$$

とおくと,

$$\begin{aligned} I(x) &= \text{Re}[A(x) \cdot e^{ik_0x}] \\ &= \frac{1}{2} [A(x) \cdot e^{ik_0x} + A^*(x) \cdot e^{-ik_0x}]. \end{aligned}$$

ただし,  $A^*$  は  $A$  の複素共役を表す. この  $I(x)$  に Fourier 変換を施すと,

$$\begin{aligned} J(k) &= \int_{-\infty}^{\infty} I(x) \cdot e^{-ikx} dx \\ &= \frac{1}{2} \left[ \int_{-\infty}^{\infty} A(x) \cdot e^{-i(k-k_0)x} dx + \int_{-\infty}^{\infty} A^*(x) \cdot e^{-i(k+k_0)x} dx \right] \\ &= \frac{1}{2} [B(k-k_0) + B^*(-(k+k_0))] \quad (\text{A.2}) \end{aligned}$$

となる. ただし  $I(x)$  の Fourier 変換を  $J(k)$ ,  $A(x)$  の Fourier 変換を  $B(k)$ ,  $B$  の



複素共役を  $B^*$  と書いた.  $I(x)$  が局所的な周期性をもち, 全体でもほぼ周期的ならば, (A.2) の第1項は第2項より十分大きい. したがって近似的に,

$$J(k) \cong \frac{1}{2} B(k - k_0) \quad (\text{A.3})$$

となる.  $B(k)$  の Fourier 逆変換は, (A.3) を用いて,

$$\begin{aligned} A(x) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} B(k) \cdot e^{ikx} dk \\ &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} 2J(k + k_0) \cdot e^{ikx} dk \end{aligned}$$

となるから,

$$J(k + k_0) \cong J'(k + k_0) + iJ''(k + k_0)$$

とおくと,

$$A(x) = \frac{1}{2\pi} \left[ 2 \int_{-\infty}^{\infty} J'(k + k_0) \cdot e^{ikx} dk + 2i \int_{-\infty}^{\infty} J''(k + k_0) \cdot e^{ikx} dk \right]$$

と書くことができる. したがって  $J'(k + k_0)$  の Fourier 逆変換の Real part を  $I_r'(x)$ , Imaginary part を  $I_i'(x)$ ,  $J''(k + k_0)$  の Fourier 逆変換の Real part を  $I_r''(x)$ , Imaginary part を  $I_i''(x)$  とすると,

$$A(x) = 2[I_r'(x) + iI_i'(x) + iI_r''(x) - I_i''(x)]$$

となるから,

$$\text{Re}[A(x)] = R(x)\cos[\phi(x)] = 2[I_r'(x) - I_i''(x)], \quad (\text{A.4})$$

$$\text{Im}[A(x)] = R(x)\sin[\phi(x)] = 2[I_i'(x) + I_r''(x)] \quad (\text{A.5})$$

である. したがって (A.4, 5) から次のように  $R(x)$  と  $\phi(x)$  を求めることができる.

$$R(x) = 2[(I_r' - I_i'')^2 + (I_i' + I_r'')^2]^{1/2}$$

$$\phi(x) = \text{Tan}^{-1}[(I_i' + I_r'') / (I_r' - I_i'')].$$

## 参考文献

## 参考書

- [1] 蔵本由紀, 川崎恭治, 山田道夫, 甲斐昌一, 篠本滋: 『パターン形成』 (朝倉書店, 1991) .
- [2] P. Manneville: *Dissipative Structures and Weak Turbulence* (Academic Press, 1990).
- [3] 森肇, 蔵本由紀: 『散逸構造とカオス』 (岩波書店, 1994) .
- [4] 沢田康次: 『非平衡系の秩序と乱れ』 (朝倉書店, 1993) .
- [5] 北原和夫, 吉川研一: 『非平衡系の科学 I』 (講談社, 1994) .
- [6] G. Nicolis and I. Prigogine: *Self-Organization in Nonequilibrium Systems* (John Wiley & Sons, 1977) [小島陽之助, 相沢洋二 訳: 『散逸構造』 (岩波書店, 1980) ] .
- [7] P. Berge, Y. Pomeau and Ch. Vidal: *L'ordre dans le Chaos* (Hermann, 1984) [相沢洋二 訳: 『カオスの中の秩序』 (産業図書, 1992) ] .
- [8] 合原一幸 編著: 『カオス』 (サイエンス社, 1990) .
- [9] 高安秀樹 編著: 『フラクタル科学』 (朝倉書店, 1987) .
- [10] G. Nicolis and I. Prigogine: *Exploring Complexity* (Freeman & Co., 1989) [安孫子誠也, 北原和夫 訳: 『複雑性の探究』 (みすず書房, 1993) ] .
- [11] H. Haken: *Synergetics* 2nd ed. (Springer-Verlag, 1978) [牧島邦夫, 小森尚志 訳: 『協同現象の数理』 (東海大学出版会, 1980) ] .
- [12] H. Haken: *Advanced Synergetics* (Springer-Verlag, 1983) [斎藤信彦, 小森尚志, 長島知正 訳: 『シナジェティクスの基礎』 (東海大学出版会, 1986) ] .
- [13] 巽友正: 『流体力学』 (培風館, 1982) .
- [14] 日本学術振興会 情報科学用有機材料第142委員会 液晶部会 編: 『液晶辞典』 (培風館, 1989) .

- [15] P. G. de Gennes and J. Prost: *The Physics of Liquid Crystals* (Oxford University Press, New York, 1993) 2nd ed.

## 第1章

- 1) G. Nicolis and I. Prigogine: [6], 序章.
- 2) 八幡英雄: 「カオスと流体」 ([8], 第6章).
- 3) P. Manneville: [2], Chap. 8~Chap. 10.
- 4) 蔵本由紀: [3], 第I部.
- 5) A. C. Newell and J. A. Whitehead: *J. Fluid Mech.* **38** (1969) 279.
- 6) E. N. Lorenz: *J. Atmos. Sci.* **20** (1963) 130.
- 7) K. Kaneko: *Physica D* **34** (1989) 1.
- 8) 蔵本由紀: [3], 第4章.
- 9) P. Manneville: [2], Chap. 10.
- 10) R. Williams: *J. Chem. Phys.* **39** (1963) 384.
- 11) E. F. Carr: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **7** (1969) 253.
- 12) W. Helfrich: *J. Chem. Phys.* **50** (1969) 100.
- 13) W. Helfrich: *J. Chem. Phys.* **51** (1969) 4092.
- 14) 甲斐昌一: 「液晶パターン」 ([1], 第4章).
- 15) K. Kondo, M. Arakawa, A. Fukuda and E. Kuze: *Jpn. J. Appl. Phys.* **22** (1983) 394.
- 16) Orsay Liquid Crystal Group: *Phys. Rev. Lett.* **25** (1970) 1642.
- 17) Orsay Liquid Crystal Group: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **12** (1971) 251.
- 18) E. Dubois - Violette, P. G. de Gennes and O. Parodi: *J. Phys. (Paris)* **32** (1971) 305.
- 19) P. G. de Gennes and J. Prost: [15], Chap. 5.
- 20) H. S. Greenside, W. M. Coughran Jr. and N. L. Schryer: *Phys. Rev. Lett.* **49** (1982) 726.
- 21) 蔵本由紀: [3], 第2章.
- 22) K. Hirakawa and S. Kai: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **40** (1977) 261.
- 23) A. Joets and R. Ribotta: *J. Phys. (Paris)* **47** (1986) 595.

## 第2章

- 1) Y. Tsuchiya and S. Horie: J. Phys. Soc. Jpn. **54** (1985) 1.
- 2) H. Yamazaki, S. Kai and K. Hirakawa: J. Phys. Soc. Jpn. **56** (1987) 1.
- 3) S. Kai, N. Chizumi and M. Kohno: J. Phys. Soc. Jpn. **58** (1989) 3541.
- 4) S. Kai, N. Chizumi and M. Kohno: Phys. Rev. A **40** (1989) 6554.
- 5) H. R. Schober, E. Allroth, K. Schoroder and H. Muller-Krumbhaar: Phys. Rev. A **33** (1986) 567.
- 6) H. S. Greenside and W. M. Coughran, Jr.: Phys. Rev. A **30** (1984) 398.
- 7) R. Kubo, K. Matuno and K. Kitahara: J. Stat. Phys. **9** (1973) 51.
- 8) M. Suzuki: Prog. Theor. Phys. **56** (1976) 77.
- 9) S. Kai, S. Wakabayashi and M. Imasaki: Phys. Rev. A **33** (1986) 2612.
- 10) J. Swift and P. C. Hohenberg: Phys. Rev. A **15** (1977) 319.
- 11) 岡野光治・小林駿介 共編：『液晶応用編』（培風館，1985）。
- 12) 日本学術振興会 情報科学用有機材料第142委員会 液晶部会 編：：[14], p158, “ねじれネマチックセル”。
- 13) 日本学術振興会 情報科学用有機材料第142委員会 液晶部会 編：[14], p186, “表面処理”。
- 14) P. G. de Gennes and J. Prost: [15], Chap. 3.
- 15) E. Bodenschats, W. Pesch and L. Kramer: Physica **D32** (1988) 135.
- 16) T. Nagaya, H. Hotta, H. Orihara and Y. Ishibashi: J. Phys. Soc. Jpn. **60** (1991) 1572.
- 17) T. Nagaya, H. Hotta, H. Orihara and Y. Ishibashi: J. Phys. Soc. Jpn. **61** (1992) 3511.
- 18) T. Nagaya, H. Orihara and Y. Ishibashi: J. Phys. Soc. Jpn. **64** (1995) 78.

## 第3章

- 1) S. Kai, N. Chizumi and M. Kohno: J. Phys. Soc. Jpn. **58** (1989) 3541.
- 2) S. Kai, N. Chizumi and M. Kohno: Phys. Rev. A **40** (1989) 6554.
- 3) H. S. Greenside and W. M. Coughran, Jr.: Phys. Rev. A **30** (1984) 398.
- 4) S. Nasuno, O. Sasaki, S. Kai and W. Zimmermann: *Pattern Formation in*

- Complex Dissipative Systems*, ed. S. Kai (World Scientific, Singapore, 1992) p.275.
- 5) 八幡英雄：「カオスと流体」 ([8], 第6章) .
  - 6) C. W. Meyer, G. Ahlers and D. S. Cannell: *Phys. Rev. Lett.* **59** (1987) 1577.
  - 7) G. Ahlers: *Physica D* **51** (1991) 421.
  - 8) J. Vinals, H. W. Xi and J. D. Gunton: *Phys. Rev. A* **46** (1992) 918.
  - 9) S. Nasuno and S. Kai: *Europhys. Lett.* **14** (1991) 779.
  - 10) S. Sasa: *Prog. Theor. Phys.* **83** (1990) 824.
  - 11) K. Hirakawa and S. Kai: *Mol. Cryst. & Liq. Cryst.* **40** (1977) 261.
  - 12) S. Nasuno, O. Sasaki, S. Kai and W. Zimmermann: *Pattern Formation in Complex Dissipative Systems*, ed. S. Kai (World Scientific, Singapore, 1992) p.275.
  - 13) S. Kai and K. Hirakawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **40** (1976) 301.
  - 14) H. Yamazaki, M. I. Tribelsky, S. Nasuno and S. Kai: *Pattern Formation in Complex Dissipative Systems*, ed. S. Kai (World Scientific, Singapore, 1992) p.346.
  - 15) M. I. Tribelsky, S. Kai and H. Yamazaki: *Phys. Rev. A* **45** (1992) 4175.
  - 16) K. Hirakawa and S. Kai: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **40** (1977) 261.
  - 17) C. Y. Yang, H. Itakura, S. Horie, Y. Tsuchiya and T. Kawakubo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 703.
  - 18) 本論文：第4章, 第5章.

#### 第4章

- 1) 徳永隆治：「カオスとフラクタル」 ([8], 第3章) .
- 2) R. H. Abraham and C. D. Shaw: *Dynamics - The Geometry of Behavior part II, III* (Aerial Press, 1985) [東保光彦 訳：『ダイナミクス—力学系ふるまいの幾何学（下）』 (現代数学社, 1989) ] .
- 3) R. Krishnamurti: *J. Fluid. Mech.* **60** (1973) 285.
- 4) S. Kai and K. Hirakawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **40** (1976) 301.
- 5) K. Hirakawa and S. Kai: *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **40** (1977) 261.

- 6) A. Joets and R. Ribotta: *J. Phys. (Paris)* **47** (1986) 595.
- 7) P. C. Hohenberg and B. I. Shraiman: *Physica D* **37** (1989) 109.
- 8) L. D. Landau and E. M. Lifschitz: *Fluid Mechanics* (Pergamon, Oxford, 1959), [竹内均訳『流体力学I, II』(東京図書, 1970, 1971)] .
- 9) D. Ruell and F. Takens: *Comm. Math. Phys.* **20** (1971) 167; **23** (1971) 344.
- 10) J. P. Gollub and H. L. Swinney: *Phys. Rev. Lett.* **35** (1975) 927.
- 11) A. Libchaber, C. Laroche and S. Fauve: *J. Phys. (Paris) Lett.* **43** (1982) L211.
- 12) P. Berge, M. Dubois, P. Manneville and Y. Pomeau: *J. Phys. (Paris) Lett.* **41** (1980) L341.
- 13) M. Sano and Y. Sawada: in *Turbulence and Chaotic Phenomena in Fluids*, ed. T. Tatsumi (North-Holland, 1984) p.167.
- 15) H. Yamazaki, S. Kai and K. Hirakawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **52** (1983) 1878.
- 16) S. Kai, N. Chizumi and M. Kohno: *J. Phys. Soc. Jpn.* **58** (1989) 3541.
- 18) S. Sasa: *Prog. Theor. Phys.* **83** (1990) 824, **84** (1990) 1008.
- 19) E. Braun, S. Rasenat and V. Steiberg: *Europhys. Lett.* **15** (1991) 597.
- 20) C. Y. Yang, H. Itakura, S. Horie, Y. Tsuchiya and T. Kawakubo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 703.
- 21) C. Y. Yang, H. Itakura, S. Horie, Y. Tsuchiya and T. Kawakubo: *J. Phys. Soc. Jpn.* **56** (1987) 425.
- 22) Y. Tsuchiya, S. Horie and H. Itakura: *J. Phys. Soc. Jpn.* **57** (1988) 669.
- 23) Y. Tsuchiya, M. Kudoo and C. Y. Yang: *J. Phys. Soc. Jpn.* **57** (1988) 691.
- 24) Y. Tsuchiya: private communication.
- 25) 本論文: 第5章.
- 26) H. Hijikuro: *Prog. Theor. Phys.* **54** (1975) 592.
- 27) 南茂夫編著: 『科学計測のための波形データ処理』(CQ出版, 1986) .
- 28) J. P. Gollub and S. V. Benson: *J. Fluid Mech.* **100** (1980) 449.
- 29) M. Sano and Y. Sano: in *Turbulence and Chaotic Phenomena in Fluids*, ed. by T. Tatsumi (North-Holland, 1984) p.167; in *Chaotic and Statistical Methods*, ed. by Y. Kuramoto (Springer, 1984) p.226.

- 30) P. Berge, Y. Pomeau and Ch. Vidal: [7].
- 31) 佐野雅己: 「カオスの構造とフラクタル」 ([9], 第3章) .
- 32) 高安秀樹: 『フラクタル』 (朝倉書店, 1986) .
- 33) F. Takens: in *Lecture Notes in Math.* 898, ed. D. A. Rand and L. S. Young (Springer, 1981) p.366.
- 34) P. Grassberger and I. Procaccia: *Physica* **9D** (1983) 189.
- 35) 佐藤洋: 『情報理論 (改訂版)』 (裳華房, 1983) .
- 36) A. Wolf, J. B. Swift, H. L. Swinney and J. A. Vastano: *Physica* **16D** (1985) 285.
- 37) H. G. Schuster: *Deterministic Chaos - An Introduction* (Physik-Verlag, 1984).
- 38) F. Daviaud, J. Lega, P. Berge, P. Couillet and M. Dubois: *Physica* **D55** (1992) 287.
- 39) R. Shaw: in *Chaos and Order in Nature*, ed. H. Haken (Springer, 1981) p.218.

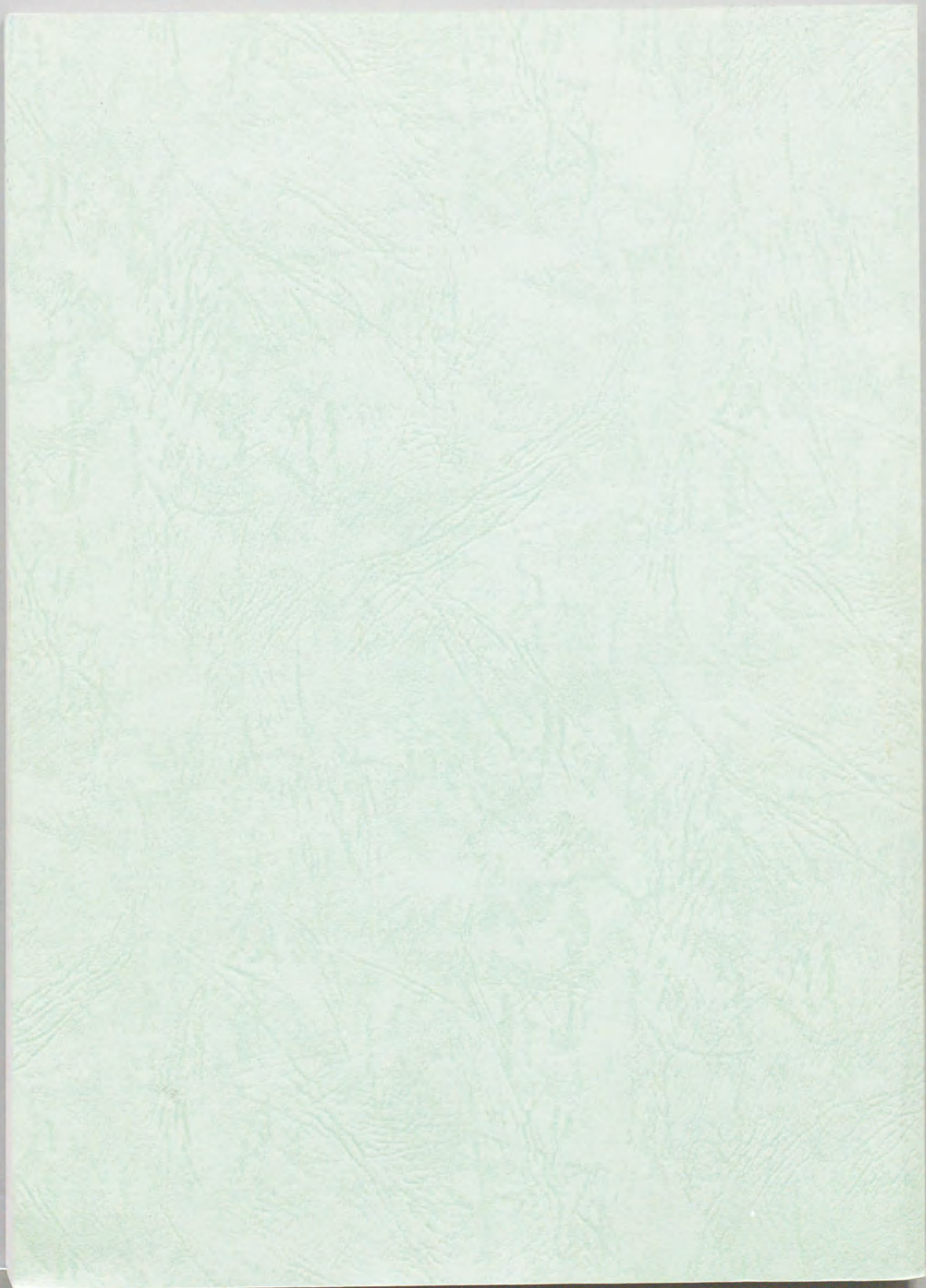
## 第5章

- 1) R. M. Clever and F. H. Busse: *J. Fluid Mech.* **65** (1974) 625.
- 2) F. H. Busse and R. M. Clever: *J. Appl. Math. and Phys.* **29** (1978) 711.
- 3) F. H. Busse and R. M. Clever: *J. Fluid Mech.* **91** (1979) 319.
- 4) E. W. Bolton, F. H. Busse and R. M. Clever: *J. Fluid Mech.* **164** (1986) 469.
- 5) R. Krishnamurti: *J. Fluid Mech.* **60** (1973) 285.
- 6) S. Kai and K. Hirakawa: *J. Phys. Soc. Jpn.* **40** (1976) 301.
- 7) S. Nasuno and S. Kai: *Europhys. Lett.* **14** (1991) 779.
- 8) S. Nasuno, O. Sasaki, S. Kai and W. Zimmermann: *Pattern Formation in Complex Dissipative Systems*, ed. S. Kai (World Scientific, Singapore, 1992) p.275.

## 第6章

- 1) F. Daviaud, M. Dubois and P. Berge: *Europhys. Lett.* **9** (1989) 441.
- 2) F. Daviaud, M. Bonetti and M. Dubois: *Phys. Rev. A* **42** (1990) 3388.
- 3) F. Daviaud, J. Lega, P. Berge, P. Coullet and M. Dubois: *Physica* **D55** (1992) 287.
- 4) M. Caponeri and S. Ciliberto: *Physica* **D58** (1992) 365.
- 5) 清水博：『生命を捉えなおす 生きている状態とは何か（増補版）』（中公新書，1990）。
- 6) 合原一幸 編著：『ニューラルシステムにおけるカオス』（東京電気大学出版局，1993）。





Inches 1 2 3 4 5 6 7 8  
cm 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19

# Kodak Color Control Patches

Blue Cyan Green Yellow Red Magenta White 3/Color Black



# Kodak Gray Scale

A 1 2 3 4 5 6 M 8 9 10 11 12 13 14 15 B 17 18 19



© Kodak, 2007 TM: Kodak